

Defektkorrelationen
in Al, Cu und verdünnten Al-Legierungen
nach Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung

von

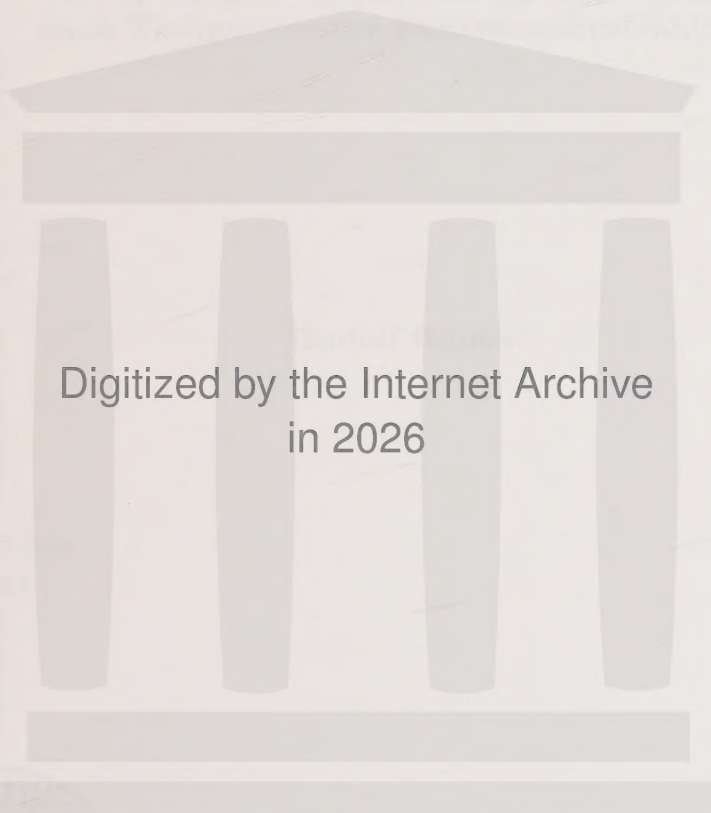
Rudolf Rauch

Oktober
1987

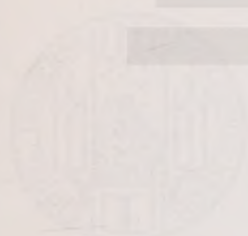


Ludwig-Maximilians-Universität
München
Fakultät für Physik





Digitized by the Internet Archive
in 2026



https://archive.org/details/IA41554619_0100

Defektkorrelationen
in Al, Cu und verdünnten Al-Legierungen
nach Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung

von

Rudolf Rauch

Oktober
1987



Ludwig-Maximilians-Universität
München
Fakultät für Physik

**Defektkorrelationen
in Al, Cu und verdünnten Al-Legierungen
nach Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung**

Dissertation der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München

vorgelegt von

Rudolf Rauch

aus Regensburg

München, den 12. Oktober 1987

1. Gutachter: Herr Prof. Dr. J. Peisl
2. Gutachter: Herr Prof. Dr. R. Sizmann

Tag der mündlichen Prüfung: 23. Dezember 1987

ZUSAMMENFASSUNG

Einkristalle aus verdünnten Al(Zn)- und Al(Ag)-Legierungen sowie aus reinem Aluminium und Kupfer wurden bei 4.6 K in der Tieftemperaturbestrahlungsanlage des Forschungsreaktors München bestrahlt. Räumliche Verteilung, Stärke und Symmetrie der Defekte wurden mit diffuser Röntgenstreuung in unmittelbarer Nähe und der weiteren Umgebung der Braggreflexe untersucht. Gleichzeitig wurde die Änderung des Gitterparameters und des elektrischen Restwiderstands beobachtet.

Aus der diffus gestreuten Intensität wurde erstmals die Größenverteilung der Kaskaden und die Konzentration der Defekte in den Kaskaden, unter Berücksichtigung des Energiespektrums der primär angestoßenen Atome, mit Modellrechnungen bestimmt.

Im Gegensatz zu früheren Interpretationen (Grasse 1980) werden die Defekte in Aluminium in weit ausgedehnten, stark verdünnten Kaskaden erzeugt. Nur 15% der Zwischengitteratome (ZGA) liegen in Defektkaskaden mit Konzentrationen größer als 300 ppm. Die Zwischengitteratombereiche überlappen sich schon bei niedrigsten Bestrahlungsdosen von $0.6 \cdot 10^{18}$ n/cm² stark. Dadurch werden bereits während der Bestrahlung ZGA-Agglomerate gebildet, die in reinem Aluminium im Mittel 3 ZGA enthalten (Grasse 1980). Ag- und Zn-Fremdatome (FA) reduzieren diese Agglomeration weitgehend.

Die korrelierte Rekombination benachbarter Leerstellen (LS) und Zwischengitteratome zu Beginn der Stufe I bis 35 K wird von den Fremdatomen nicht wesentlich behindert. Erst zwischen 40 und 70 K, wenn Einzel-ZGA und kleine Agglomerate frei

wandern können, wird die Rekombination und Agglomeration der ZGA durch Einfang an den Fremdatomen unterdrückt. Der Auflösung der Kaskadenstruktur wird in den Al-Legierungen durch Behinderung der ZGA-Diffusion entgegengewirkt.

In Kupfer werden die Defekte bis zu hohen Energien in sehr kleinen, hochkonzentrierten Defektkaskaden erzeugt. Mehr als 50% der Zwischengitteratome liegen in Defektkaskaden mit Konzentrationen größer als 1000 ppm. Innerhalb der hochkonzentrierten Kaskaden agglomerieren die Zwischengitteratome stark (mittlerer Agglomerationsgrad 14), was mit "thermal spike"-Effekten erklärt werden kann (Averback 1978, 1986).

Durch Messung der asymptotisch diffusen Streuung über einen großen q -Bereich wurde die Größenverteilung von ZGA- und LS-Loops bei thermischer Erholung untersucht. Ab 60 K bilden die Zwischengitteratome in Kupfer Versetzungsringe, die von einem mittleren Radius von 11 Å auf 18 Å bei 300 K anwachsen. Der Kern der Leerstellenverteilung ist in diesem Temperaturbereich relativ stabil und im wesentlichen von sehr kompakten Leerstellenzonen innerhalb der Kaskaden vorgeprägt. Bis zu 30% der Leerstellen könnten bereits nach Bestrahlung zu Versetzungsringen kollabiert sein. Nach Erholung bei 300 K liegen noch 30% der ursprünglich erzeugten Defekte in Form von Versetzungsringen vor. Der mittlere Radius der LS-Loops beträgt 10 Å.

In reinem Al und den Al-Legierungen bilden die Zwischengitteratome bei thermischer Erholung entweder keine oder nur sehr kleine Loops ($\langle R_L \rangle < 10$ Å). Mit Beginn der Leerstellenwanderung tritt vollständige thermische Erholung ein, was die Bildung von stabilen LS-Agglomeraten oder LS-FA-Komplexen ausschließt.

INHALTSVERZEICHNIS

Seite

I. EINLEITUNG	1
II. THEORIE	3
1. Defekterzeugung durch Bestrahlung	3
2. Gitterverzerrung durch Punktdefekte	7
2.1. Doppelkrafttensor	7
2.2. Verschiebungsfeld	8
3. Röntgenstreuung an defekten Kristallen	9
3.1. Gitterkonstantenänderung	9
3.2. Diffuse Streuung	10
3.2.1. Zufallsverteilte Defekte	11
3.2.1.1. Huangstreuung	13
3.2.1.2. Asymptotische Streuung	14
3.2.1.3. Numerische Berechnung der diffusen Streuung	20
3.2.2. Defektkorrelationen	22
III. EXPERIMENTELLES	27
1. Meßaufbau	27
2. Meßkryostat	30
3. Meßablauf	33
3.1. Elektrische Restwiderstandsmessung	33
3.2. Gitterkonstantenmessung	33
3.3. Messung der diffusen Streuung	34
4. Auflösung	35
5. Absolutintensität	39
6. Bestrahlen und Umschleusen	41
7. Proben	44

IV. ERGEBNISSE NACH BESTRAHLUNG	46
1. Reines Al und Al-Legierungen	47
1.1. Agglomeration und Symmetrie der Defekte	52
1.2. Nahfeld der Defekte	56
1.3. Kaskadenkorrelation der Defekte	62
1.3.1. Korrelationsfunktion	62
1.3.2. Größenverteilung der Kaskaden	65
1.4. Diskussion der Defektverteilung	74
2. Defektkorrelation in reinem Cu	80
V. ERGEBNISSE BEI THERMISCHER ERHOLUNG	90
1. Einfluß der Fremdatome auf die Defektdiffusion	90
1.1. Defektrekombination	91
1.2. Defektagglomeration	92
1.3. Änderung der Kaskadenkorrelation	96
1.4. Diskussion des Ausheilverhaltens	98
2. Reines Cu und Al	101
2.1. Bildung von Versetzungsringen	101
2.2. Einfluß der primären Kaskadenstruktur	111
VI. SCHLUSSBEMERKUNG	113
LITERATURVERZEICHNIS	115

ABKÜRZUNGEN UND NOMENKLATUR

PKA	primär angestoßenes Atom
TTB	Tieftemperatur-Bestrahlungsanlage
ZGA	Zwischengitteratom
LS	Leerstelle
FA	Fremdatom
e.u.a.	Elektroneneinheiten pro Atom
a.u.	willkürliche Einheiten
$\underline{r}_m$	Ortsvektor des Atoms m
$\delta \underline{r}_m$	statische Auslenkung des Atoms m
$\underline{u}(\underline{r})$	Verschiebungsfeld eines Defekts
ΔV_D	Relaxationsvolumen des Defekts D
(P_{ij})	Dipolkraftttensor
c_{ij}	elastische Konstanten
a	Gitterkonstante
V_a	Atomvolumen
f	Atomformfaktor
I	Intensität
$\underline{K}$	Streuvektor
$\underline{G}$	reziproker Gittervektor
$\underline{g}$	Abstand vom reziproken Gittervektor ($= \underline{K} - \underline{G}$)
c	Defektkonzentration
T	kinetische Energie des PKA
T_{Sch}	Schädigungsenergie
E_V	mittlere Verlagerungsenergie
ξ	Effektivität der Defekterzeugung
$\rho(T)$	Energieverteilung der PKA
$n(T)$	Anzahl der erzeugten Defekte pro PKA der Energie T
$R(T)$	Radius der Defektkakade, die von einem PKA mit Energie T erzeugt wurde



EINLEITUNG

Trifft ein schnelles Neutron auf einen Kristall, so erzeugt es mit einem Stoß nicht nur einen einzelnen Frenkeldefekt - ein Paar aus Leerstelle (LS) und Zwischengitteratom (ZGA)-, sondern mehrere Defekte - eine Defektkaskade. Alle für die Anwendung wichtigen Strahlenschäden werden von dieser korrelierten Defekterzeugung bestimmt. Sie sind insbesondere auf dem Gebiet der Ionenimplantation von großer technischer Bedeutung und bestimmen die Materialprobleme in Spalt- und Fusionsreaktoren. Will man die physikalischen Effekte, die diese Strahlenschäden verursachen, verstehen, so muß man sowohl die Kaskadenstruktur als auch die Eigenschaften der isolierten Defekte kennen.

Die diffuse Röntgenstreuung ist in beiden Punkten eine aussagekräftige Methode, da sie sowohl für die Stärke und Symmetrie der Defekte als auch für ihre räumliche Verteilung empfindlich ist. Sie wurde zuerst bei der Untersuchung von Strahlenschäden in Alkalihalogeniden angewandt (Peisl 1967). Ein Überblick über die Messungen an elektronenbestrahlten Metallen ist bei Ehrhart (1978) zu finden. Von Guerard (1974) und Grasse (1980) haben Defekte nach Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung mit dieser Methode untersucht und dabei erstmals den Einfluß der Defektkorrelation in Kaskaden auf die diffuse Streuung beobachtet (von Guerard 1980).

Andere experimentelle Methoden können nur in Teilbereichen Aufschlüsse über die mikroskopische Kaskadenstruktur liefern. Mit Feldionenmikroskopie können Informationen über die Leerstellenbereiche der Kaskaden gewonnen werden (Beavan 1971, Wei 1981). Allerdings ist man dabei auf die Untersuchung

oberflächennaher Schichten beschränkt. Mit Transmissionselektronenmikroskopie können nur größere und kontrastreiche LS- und ZGA-Agglomerate ($> 10 \text{ \AA}$) beobachtet werden (Eyre 1973, Kiritani 1986, Kirk 1986).

Sehr wichtig für das Verständnis der Kaskadenstrukturen sind Computersimulationen. Ausgehend von grundlegenden Arbeiten (Gibson 1960, Beeler 1966) wurde diese Methode immer weiter verfeinert (Robinson 1974) und damit Defektkaskaden über einen weiten Energiebereich in verschiedenen Materialien simuliert (Benedek 1981, Heinisch 1982, 1983, Dierckx 1987). Ein Element dieser Arbeit ist der Vergleich der experimentell gewonnenen Ergebnisse über die Kaskadenstruktur mit den Erkenntnissen aus Computersimulationen.

Die primäre Kaskadenstruktur kann nur nach Tieftemperaturbestrahlung untersucht werden, wenn die erzeugten Defekte "eingefroren" sind. Bei höheren Temperaturen werden die Defekte beweglich und können agglomerieren oder rekombinieren. Die ursprüngliche Defektverteilung in der Kaskade begünstigt die Bildung von Agglomeraten und beeinflußt dadurch stark das Verhalten bei thermischer Erholung.

Von großer technischer Bedeutung ist der Einfluß von Fremdatomen (FA) auf die Strahlenschäden. Bewegliche Defekte können mit den Fremdatomen wechselwirken, so daß sowohl die primäre Struktur der Defektkaskade als auch die thermische Erholung der Defekte von den Fremdatomen verändert wird.

Ziel dieser Arbeit war es, die Methode der diffusen Röntgenstreuung zu verfeinern und damit die Struktur der Defektkaskaden in Al und Cu nach Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung zu untersuchen und ihre Bedeutung für das Verhalten bei thermischer Erholung zu studieren. An verdünnten Al-Legierungen sollte der Einfluß von Fremdatomen auf die Defekterzeugung und das Erholungsverhalten untersucht werden.

II. THEORIE

II.1. DEFEKTERZEUGUNG DURCH BESTRAHLUNG

Durch den Beschuß mit energiereichen Teilchen werden in Metallen Atome aus ihren regulären Gitterplätzen herausgeschlagen und Frenkeldefekte erzeugt.

Zur Bildung eines stabilen Frenkeldefekts muß eine bestimmte Mindestenergie, die sogenannte minimale Verlagerungsenergie E_{Vmin} , auf das angestoßene Atom übertragen werden. Hat es diese Energie nicht erhalten, so werden Zwischengitteratom und Leerstelle nicht weit genug voneinander getrennt und rekombinieren spontan. Die minimale Verlagerungsenergie hängt von der Richtung im Gitter ab, in der das Atom verlagert wird. Das Gebiet um einen Defekt, aus dem der Defektpartner heraustransportiert werden muß, damit spontane Rekombination nicht mehr stattfindet, wird als spontanes Rekombinationsvolumen bezeichnet (Gibson 1960). Spielen die Details der Richtungsabhängigkeit der primären Verlagerung keine Rolle, so kann man das spontane Rekombinationsvolumen näherungsweise durch einen Radius R_{Rek} beschreiben und E_{Vmin} durch eine mittlere Verlagerungsenergie E_V ersetzen.

Bei Bestrahlung mit Elektronen, die eine Energie von ungefähr 1 MeV besitzen, ist die an die Gitteratome übertragene Energie so klein, daß die primär verlagerten Atome (PKA = primary knocked on atom) nicht mehr genügend Energie besitzen, um ihrerseits sekundäre Verlagerungen zu erzeugen. Im Gegensatz zur Elektronenbestrahlung, bei der also überwiegend Einzeldefekte gebildet werden, können durch Bestrahlung mit schnellen Neutronen oder Ionen sehr hochenergetische Rückstoßatome erzeugt werden, die ihrerseits eine Kaskade von sekundären Verlagerungen auslösen.

Die theoretische Behandlung des Problems läßt sich in zwei voneinander unabhängige Teile aufspalten: in die Berechnung der Energie- und Richtungsverteilung der primär angestoßenen Atome (PKA) und in die Behandlung der Defektkaskade, die von einem PKA der Energie T erzeugt wird. Für den ersten Teil ist nur die Richtung und die kinetische Energie der einfallenden Teilchen und deren Wechselwirkung mit den Gitteratomen maßgebend. Damit hängt der zweite Teil nur noch von den Potentialen und den Gittereigenschaften des bestrahlten Materials ab und nicht mehr von der einfallenden Teilchenstrahlung.

Eine räumliche Vorstellung von der Struktur der Defektkaskaden wird in Abbildung II.1 vermittelt. Gezeigt sind Computersimulationen an Aluminium und Kupfer (Benedek 1981, Averbach 1983). Die Energie der primär angestoßenen Atome ist für die Bestrahlung mit schnellen Neutronen typisch.

Die Zwischengitteratome können durch Ersetzungsstoßfolgen weit von den Leerstellen getrennt werden, die am Ort ihrer Entstehung zurückbleiben. So entsteht die charakteristische Struktur der Kaskade: eine leerstellenreiche Zone im Inneren ist von einer mehr oder weniger weit ausgedehnten Wolke von Zwischengitteratomen umgeben (Seeger 1962). Der wesentliche Unterschied zwischen Aluminium und Kupfer ist auf die verschiedenen großen Wechselwirkungspotentiale zurückzuführen. Unterhalb einer bestimmten Energie E_B erzeugen die Kupferatome ($E_B = 23$ keV) praktisch in jeder durchlaufenen Gitterebene eine Leerstelle (Brinkman 1954). Die Kaskaden in Aluminium sind wegen des viel kleineren Wechselwirkungspotentials ($E_B = 1.2$ keV) wesentlich weiter ausgedehnt.

Besitzt das PKA eine Energie von einigen 10 keV, so kann es zur Bildung sogenannter Subkaskaden kommen: Das primär angestoßene Atom kann auf ein sekundär angestoßenes soviel Energie übertragen, daß dieses seinerseits eine Defektkaskade erzeugen kann.

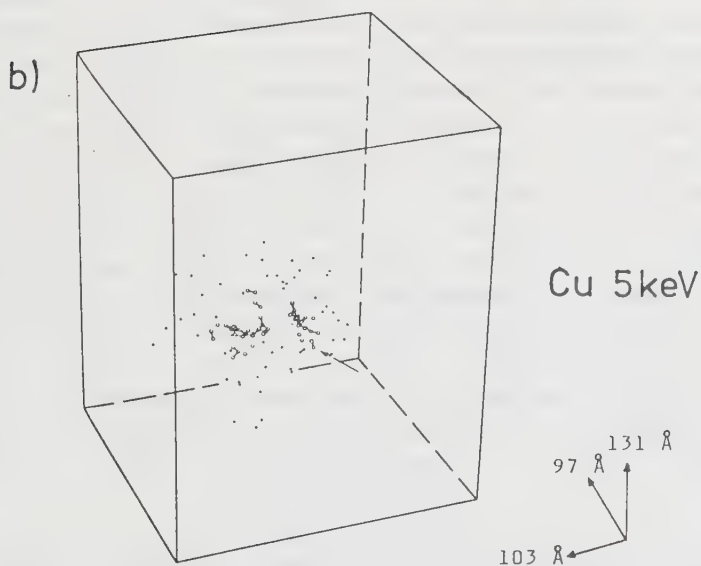
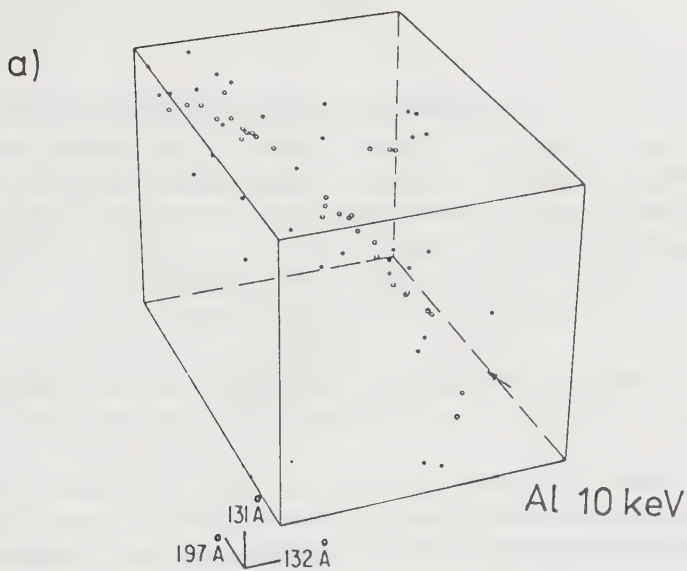


Abb.II.1 Computersimulationen von Defektkaskaden in Al (a) (Averback 1983) und in Cu (b) (Benedek 1981) (ZGA (*), LS (o)). LS auf benachbarten Plätzen sind mit Strichen verbunden. Die Pfeile geben die Richtung der PKA mit Energie T an.

Die von einem PKA der Energie T im Mittel erzeugte Anzahl von Frenkeldefekten $n(T)$ wurde nach verschiedenen Modellen berechnet (Köhler und Schilling 1965). Häufig verwendet wird eine Modifikation des "Kinchin-Pease-Modells" (Kinchin und Pease 1955):

$$n(T) = \begin{cases} 0.8T_{Sch}/2E_V & \text{für } T > 2.5E_V \\ 1 & \text{für } E_V < T < 2.5E_V \\ 0 & \text{für } T < E_V \end{cases} \quad (\text{II.1})$$

Die Schädigungsenergie T_{Sch} gibt dabei die rein elastische Energie an, die für Verlagerungen zur Verfügung steht.

Für hochenergetische Kaskaden (etwa $T > 1 \text{ keV}$) ist die lineare Abhängigkeit von $n(T)$ von T_{Sch} , wie es das modifizierte Kinchin-Pease-Modell vorhersagt, oft weniger gut erfüllt. Wegen der hohen Energiedichte in den Kaskaden, die in der Größenordnung von eV pro Atom liegt, können sich Defekte nach Abschluß der Defekterzeugung (nach etwa 10^{-13} s) noch bewegen und rekombinieren oder agglomerieren, bis die Energie an das umgebende Kristallgitter (nach etwa 10^{-11} s) abgegeben ist. Effekte in den Kaskaden, die von einer hohen Energiedichte verursacht werden, werden durch die Begriffe "thermal spike" (Seitz und Köhler 1956) und "displacement spike" (Brinkman 1954) charakterisiert. Eine zusammenfassende Darstellung der neuesten Entwicklungen auf diesem Gebiet ist bei Averbach (1986) zu finden.

Die Schädigungsrate, d.h. die Anzahl der erzeugten Defekte pro Zeiteinheit, läßt sich damit schreiben als

$$dn/dt = \int n(T)\rho(T)dT \quad (\text{II.2})$$

wobei die Funktion $\rho(T)$ die Energieverteilung der primären Rückstoßatome angibt. Diese Funktion kann aus dem Neutronenspektrum $\phi(E)$ und aus den Wirkungsquerschnitten berechnet werden (Parkin 1976). Vor allem bei den leichten Elementen überwiegen die elastischen Stoßprozesse.

II.2. GITTERVERZERRUNGEN DURCH PUNKTDEFEKTE

Durch den Einbau von Defekten in einen Kristall werden die Atome von ihren ursprünglichen Gitterpositionen $\underline{r}_m^0$ verschoben. Das Gitter relaxiert in eine neue stabile Gleichgewichtslage ($\underline{r}_m'$). Die Verschiebung $\delta \underline{r}_m^0 = \underline{r}_m' - \underline{r}_m^0$ eines Atoms läßt sich im einfachsten Fall als lineare Überlagerung der einzelnen Defektbeiträge darstellen:

$$\delta \underline{r}_m^0 = \sum_{\mu} \underline{u}_m^{\mu} \quad (\text{II.3})$$

Dabei ist $\underline{u}_m^{\mu}$ die Verschiebung des Atoms m durch den Defekt μ . In der Praxis wird das Verschiebungsfeld eines Defekts durch eine Kräfteverteilung $\underline{f}_m$ beschrieben (Kanzaki 1957). Die Kräfte $\underline{f}_m$ werden dabei so gewählt, daß sie im defektfreien Gitter die gleichen Verschiebungen der Atome verursachen wie der Defekt selbst. Diese sogenannten Kanzakikräfte sind daher keine realen Kräfte, sondern Parameter, die das Verschiebungsfeld eines Defekts charakterisieren.

II.2.1. DIPOLKRAFTENSOR

Die Kräfteverteilung kann, analog zur Ladungsverteilung in der Elektrostatik, durch eine Multipolentwicklung beschrieben werden. Wegen der Translationsinvarianz des Gitters ist die Summe der Kanzakikräfte gleich Null. Der erste nichtverschwindende Term in der Entwicklung wird Dipolkrafttensor (P_{ij}), oder Doppelkrafttensor genannt:

$$P_{ij} = \sum_m f_{mi} r_{mj} \quad (\text{II.4})$$

Das langreichweitige Verschiebungsfeld in großer Entfernung vom Defekt wird ausreichend durch diesen Tensor beschrieben. Dabei genügt es im allgemeinen, nur Kräfte auf nächste Nachbaratome anzusetzen.

II.2.2. VERSCHIEBUNGSFELD

Das Verschiebungsfeld eines Defekts wird durch die Gitterstatik bestimmt (Leibfried 1978):

$$u_i^n = \sum_{mj} G_{ij}^{n-m} f_j^m \quad (\text{II.5})$$

Dabei ist G_{ij}^{n-m} die harmonische Greensfunktion des idealen Gitters. Für große Entfernungen vom Defekt läßt sich das Gitter durch die Näherung der elastischen Kontinuumstheorie beschreiben. Damit ergibt sich für das langreichweitige Verschiebungsfeld

$$u_i(r) = - \sum_{ij} \partial_l G_{ij}(r) P_{jl} \quad (\text{II.6})$$

Da die elastische Greensfunktion proportional zu $1/r$ ist, nimmt das Verzerrungsfeld mit $1/r^2$ ab. Die Symmetrie des Dipolkrafttensors und die elastische Anisotropie des Kristalls bestimmen die Richtungsabhängigkeit des Verschiebungsfeldes. In isotroper Näherung ist das Verschiebungsfeld gegeben durch (Leibfried 1978)

$$u(r) = \frac{1}{4\pi} \eta \Delta V_D \frac{r}{r^3} \quad (\text{II.7})$$

ΔV_D makroskopische Volumenänderung durch einen Defekt D im endlichen Kristall (Relaxationsvolumen)

η Verhältnis von Volumenänderung pro Defekt im unendlichen Kristall zur Volumenänderung im endlichen Kristall

II.3. RÖNTGENSTREUUNG AN DEFECTEN KRISTALLEN

Die völlig periodische Anordnung der Atome im idealen Kristall verursacht im Streuexperiment scharfe Braggreflexe. Durch Defekte und ihre Verzerrungsfelder wird diese ideale Ordnung zerstört, und diffus gestreute Intensität in der Nähe und zwischen den Reflexen tritt auf. Die Intensität der Braggpeaks wird durch einen statischen Debye-Waller-Faktor geschwächt und ihre Lage verschoben, da das Gitter mit Defekten eine geänderte Gitterkonstante besitzt.

II.3.1. GITTERKONSTANTENÄNDERUNG

Die relative Gitterkonstantenänderung $\Delta a/a$ eines kubischen Kristalls mit einer mittleren Defektkonzentration c ist gegeben durch

$$\frac{\Delta a}{a} = \frac{c}{3V_a} \frac{Sp(P_{ij})}{(c_{11} + 2c_{12})} \quad (\text{II.8})$$

V_a Atomvolumen

c_{ij} elastische Konstanten

Dabei wurden Bildkräfte des endlichen Kristalls berücksichtigt und über äquivalente Defektlagen gemittelt. Die Spur des Doppelkrafttensors ($Sp(P_{ij})$) wird durch das Relaxationsvolumen ΔV_D des Defekts bestimmt:

$$Sp(P_{ij}) = (c_{11} + 2c_{12})\Delta V_D \quad (\text{II.9})$$

II.3.2. DIFFUSE STREUUNG

In diesem Abschnitt wird die Theorie der diffusen Streuung an Gitterdefekten behandelt, soweit sie für das Verständnis der angeführten Experimente von Bedeutung ist. Eine ausführliche Bearbeitung dieser Problematik ist in der umfangreichen Arbeit von Krivoglaз (1969) zu finden. Einzelne Teilaspekte werden genauer bei Trinkaus (1972) und Dederichs (1973) diskutiert.

Aus der kinematischen Theorie erhält man die Amplitude der gestreuten Strahlung durch phasenrichtige Addition der Streubeiträge der einzelnen Atome. Zur Behandlung der diffusen Streuung ist es vorteilhaft, die Orte der Atome im defekten Kristall als Abweichung $\delta \underline{r}_m$ vom aufgeweiteten oder kontrahierten mittleren Gitter $\underline{r}_m$ darzustellen. Damit läßt sich die Streuintensität des defekten Kristalls in Abhängigkeit vom Streuvektor $\underline{K}$ schreiben als

$$I(\underline{K}) = \left| \sum_m f_m e^{i\underline{K}(\underline{r}_m + \delta \underline{r}_m)} + \sum_{\mu} f_{\mu}(\underline{K}) e^{i\underline{K}(\underline{r}_{\mu} + \delta \underline{r}_{\mu})} \right|^2 \quad (\text{II.10})$$

f_m Streuvermögen des Atoms m

f_{μ} Streuvermögen des Defekts μ

Summiert wird über alle Gitterpunkte m und Defekte μ .

Für beliebige Verzerrungsfelder und Defektverteilungen ist die Berechnung der Streuintensität sehr schwierig. Deswegen werden die beiden Probleme getrennt behandelt und zunächst das Streuverhalten von zufällig verteilten Punktdefekten diskutiert. In dem darauffolgenden Abschnitt wird dann der Einfluß von Defektkorrelationen berücksichtigt.

II.3.2.1. ZUFÄLLIG VERTEILTE PUNKTDEFEKTE

Für kleine Konzentrationen und zufällig verteilte Defekte erhält man die defektinduzierte diffuse Intensität durch inkohärente Addition der Beiträge der einzelnen Defekte:

$$I_d = \sum_{\mu} \left| \sum_m f_m (e^{iK u_m} - 1) e^{iK(r_m - r_{\mu})} + f_{\mu}(K) e^{iK(r_{\mu} + \delta r_{\mu})} \right|^2 \quad (\text{II.11})$$

Die Braggintensität des mittleren Gitters wurde dabei subtrahiert. Indem wir den Mischterm aus den Streuamplituden verschiedener Defekte vernachlässigt haben, haben wir angenommen, daß die Phasenverschiebung, die ein Defekt am Platz eines Nachbardefekts verursacht, im Mittel klein ist (Einzeldefektnäherung). Im folgenden beschränken wir uns auf eine Defektsorte D und ein monoatomares Gitter. Damit folgt aus Gleichung (II.11)

$$I_d = cN \left| f \sum_m (e^{iK u_m} - 1) e^{iK r_m} + f_D(K) \right|^2 \quad (\text{II.12})$$

c mittlere Defektkonzentration

N Anzahl der Gitterplätze

f_D $\begin{cases} -f & \text{für LS} \\ f(2\cos(Kl/2) - 1) & \text{für ZGA-Hantel mit Hantelabstand } l \end{cases}$

Der Defektursprung wurde dabei in den Nullpunkt gelegt. Die diffus gestreute Intensität ist damit gleich dem Produkt aus der Anzahl der Defekte cN und dem Quadrat der Streuamplitude, die von einem Defekt verursacht wird, dem sogenannten Defektstrukturfaktor. Dieser setzt sich zusammen aus dem Streubeitrag des Defekts selbst $f_D(K)$ (Lauestreuung) und dem seines Verzerrungsfeldes (Verzerrungsfeldstreuung).

Ebenso wie die Braggreflexe wird auch die diffuse Streuung durch einen thermischen und statischen Debye-Waller-Faktor geschwächt. Der durch die statischen Verschiebungen verur-

sachte Debye-Waller-Faktor ist analog zum thermischen definiert durch

$$e^{-L} = \langle e^{i\mathbf{K}\delta\mathbf{r}_m} \rangle \quad (\text{II.13})$$

Für zufällig verteilte Defekte ergibt die Mittelwertbildung

$$L = c \sum_m (1 - \cos(\mathbf{K}\mathbf{u}_m)) \quad (\text{II.14})$$

Im wesentlichen tragen zur Summe nur die stark verschobenen Nachbaratome des Defekts bei. Der Übersichtlichkeit halber werden die Debye-Waller-Faktoren nicht mit angeschrieben. Um sie in die Formeln zu integrieren, braucht man nur den Atomformfaktor f durch $(f \cdot \exp(-L) \cdot \exp(-M))$ zu ersetzen.

Für die weiteren Betrachtungen ist es vorteilhaft, das langreichweitige Verschiebungsfeld von der stark verzerrten Umgebung des Defekts abzutrennen. Aus Gleichung (II.12) folgt

$$I_d = cN \left| f \sum_m i\mathbf{K}\mathbf{u}_m e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}_m} + f \sum_m^{NN} (e^{i\mathbf{K}\mathbf{u}_m} - 1 - i\mathbf{K}\mathbf{u}_m) e^{i\mathbf{K}\mathbf{r}_m} + f_D \right|^2 \quad (\text{II.15})$$

Die erste Summe ist der lineare Term in der Entwicklung von $\exp(i\mathbf{K}\mathbf{u}_m)$. Der zweite Term korrigiert den Fehler, der gemacht wird, wenn man im ersten Term über Gitterbereiche summiert, in denen die Verschiebungen nicht mehr klein sind (d.h. $\mathbf{K}\mathbf{u} > 1$). Für diese Nahfeldkorrektur genügt die Summation über die stark verschobenen Atome in der näheren Umgebung des Defekts.

Für beliebige Streuvektoren und Verschiebungen ist die Berechnung des Defektstrukturfaktors immer noch schwierig. Die numerische Lösung dieses Problems wird in Abschnitt (II.3.2.1.) behandelt. Wir vereinfachen zunächst weiter und betrachten nur die Streuung sehr nahe am Braggreflex, also bei kleinen Abweichungen $\mathbf{q}$ des Streuvektors $\mathbf{K}$ vom reziproken Gittervektor $\mathbf{G}$. Der Phasenfaktor $\exp(-i\mathbf{K}\mathbf{r})$ kann dann durch $\exp(i\mathbf{q}\mathbf{r})$ ersetzt werden.

II.3.2.1. HUANGSTREUUNG

Solange die Verschiebungen klein sind ($Ku \ll 1$), dominiert für kleines q der lineare Term in Gleichung (II.15), die sogenannte Huangstreuung (Huang 1947):

$$I_H = cNf^2 |iK\tilde{u}(q)|^2 \quad (\text{II.16})$$

mit
$$\tilde{u}(q) = \sum_m \underline{u}_m e^{iqr_m}, \quad (\text{II.17})$$

der Fouriertransformierten des Verschiebungsfeldes.

Geht man über zur Kontinuumsstheorie und verwendet den Ausdruck von Gleichung (II.6) für $\underline{u}(\underline{r})$, so ergibt sich

$$\tilde{u}_i(q) = i \sum_{jk} q_k \Phi_{ij}^{-1}(q) P_{jk} \quad (\text{II.18})$$

Die inverse dynamische Matrix Φ_{ij}^{-1} ist für $q \rightarrow 0$ durch die elastischen Konstanten des Kristalls gegeben. Durch Mittelung über alle Defektorientierungen erhalten wir

$$I_H(q) = \frac{cN}{3} \frac{f^2}{V_a^2} \frac{G^2}{q^2} \Pi \quad (\text{II.19})$$

Die Größe Π wird dabei vom Doppelkrafttensor des Defekts, den elastischen Eigenschaften des Kristalls und der Richtung von q bestimmt. Sie ist für einige hochsymmetrische Richtungen im kubischen System in Tabelle II.1 angegeben.

$\underline{q}$	(hh0)			(hhh)
$\underline{q}$	110	$\bar{1}\bar{1}0$	001	111
Π	$\frac{2(\alpha + \beta + 2\gamma)}{(c_{11} + c_{12} + 2c_{44})^2}$	$\frac{2(\alpha - \beta)}{(c_{11} - c_{12})^2}$	$\frac{\gamma}{c_{44}^2}$	$\frac{3(\alpha + 2\beta + 4\gamma)}{(c_{11} + 2c_{12} + 4c_{44})^2}$

$$\alpha = \sum_i P_{ii}^2; \quad \beta = \sum_{i>j} P_{ii}P_{jj}; \quad \gamma = \sum_{i>j} P_{ij}^2$$

Tabelle II.1

Man sieht, daß wegen der Orientierungsmittelung nur drei unabhängige quadratische Komponenten des Doppelkrafttensors aus der Huangstreuung bestimmt werden können.

Typisch für die Huangstreuung ist die Intensitätsabnahme mit $1/q^2$. Für den isotropen Defekt im isotropen Medium gilt die anschauliche Formel

$$I_H = cNf^2 \left(\frac{\Delta V_D}{V_a} \right)^2 \frac{G^2}{q^2} \cos^2 \vartheta \quad (\text{II.20})$$

Dabei gibt ϑ den Winkel zwischen $\underline{q}$ - und $\underline{G}$ -Vektor an. Wichtig ist, daß die Huangintensität vom Quadrat der Defektstärke abhängt. Deshalb reagiert sie sehr empfindlich auf die Agglomeration von Defekten.

Nimmt man an, daß sich die Verschiebungsfelder der n_{cl} Defekte im Agglomerat linear überlagern ($\Delta V_{cl} = n_{cl} \Delta V_D$), so erhält man aus Gleichung (II.20)

$$I_H \sim \left(\frac{c}{n_{cl}} \right) (n_{cl} \Delta V_D)^2 = n_{cl} c \Delta V_D^2 \quad (\text{II.21})$$

Die Huangintensität hat sich also um den Faktor n_{cl} gegenüber der Streuung von Einzeldefekten erhöht.

II.3.2.1.2. ASYMPTOTISCHE STREUUNG

Im vorhergehenden Abschnitt haben wir uns auf die Streuung in der unmittelbaren Umgebung der Braggreflexe beschränkt. Diese wird von den langreichweitigen Korrelationen der Atome und damit durch Gitterbereiche mit kleinen Verschiebungen bestimmt. Im folgenden soll der reflexferne Teil der diffusen Streuung untersucht werden, der durch kurzreichweitige Korrelationen und entsprechend durch die Bereiche mit großen Verschiebungen in der unmittelbaren Umgebung der Defekte

gegeben ist. Bei der Berechnung dieser Intensität können die Phasenfaktoren der Streuwellen nicht mehr, wie bei der Huangstreuung, nach den Verschiebungen der Gitteratome entwickelt werden. Eine sehr einleuchtende Darstellung dieser Problematik ist bei Trinkaus (1971) zu finden.

Anschaulich können wir uns den defekten Kristall aus vielen kleinen Mosaikblöckchen mit unterschiedlichen Verzerrungen und Verdrehungen aufgebaut denken. Da für größere Abstände vom Braggreflex $\exp(i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r})$ eine räumlich rasch oszillierende Funktion ist, kann man die an den Mosaikblöckchen gestreuten Wellen inkohärent überlagern. Es können nur solche Bereiche wesentlich zur Intensität beitragen, die bei gegebenem Streuvektor die Reflexionsbedingung erfüllen (Stokes und Wilson 1944). Die Streuverteilung um einen reziproken Gitterpunkt ist damit durch die Häufigkeitsverteilung der Abstände und Richtungen der reflektierenden Netzebenenscharen gegeben.

Diese Näherung entspricht der Anwendung der Methode der stationären Phase bei der Berechnung der Streuamplituden. In der Integraldarstellung ist die Amplitude der Verzerrungsfeldstreuung gegeben durch

$$A_D = \frac{f}{V_a} \int e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r} + i\mathbf{K}\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r})} dV \quad (\text{II.22})$$

Da für größere q der Integrand eine räumlich rasch oszillierende Funktion ist, tragen nur solche Bereiche um Orte $\mathbf{r}_s$ wesentlich zum Integral bei, für die die Phase $\varphi = \mathbf{q}\cdot\mathbf{r} + \mathbf{K}\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r})$ stationär wird:

$$\nabla\varphi(\mathbf{r}_s) = \mathbf{q} + \nabla(\mathbf{K}\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r}_s)) = 0 \quad (\text{II.23})$$

Die Beiträge zur Streuamplitude von den anderen Gebieten löschen sich dagegen aus.

Für ein Verschiebungsfeld $\underline{u}(r) \sim \Delta V_D / r^2$ ergibt sich für die asymptotische Streuung (Trinkaus 1972)

$$I_A \sim cN \frac{f^2}{V_a^2} \Delta V_D \frac{K}{q^4} \quad (\text{II.24})$$

Im Gegensatz zur Huangstreuung hängt die Intensität im asymptotischen Bereich nur linear von der Defektstärke (ΔV_D) ab und ist durch ein $1/q^4$ -Verhalten charakterisiert.

Der Einfluß der Defektagglomeration auf die Huang- und die asymptotische Streuung ist schematisch in Abbildung II.2 dargestellt. Die Huangstreuung wird um den Faktor n_{cl} erhöht. Der Übergang zur asymptotischen Streuung bei q_{cl} wird vom Radius der stark verzerrten Gebiete r_{cl} bestimmt und verschiebt sich mit zunehmender Defektstärke zu kleineren q -Werten ($q_{cl} \approx 1/r_{cl}$). r_{cl} ist dabei durch $Ku(r_{cl}) = 1$ gegeben.

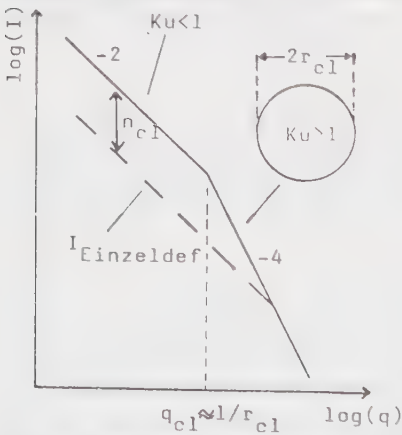


Abb.II.2 Einfluß der Defektagglomeration auf die Streuverteilung (Agglomerat aus n_{cl} Defekten).

Da die Defekte dazu neigen, in dicht gepackten Netzebenen zu kondensieren, bilden größere Agglomerate häufig Versetzungsringe (Loops). Auf die Streuung dieser Gebilde soll etwas ausführlicher eingegangen werden. Das Relaxationsvolumen eines Loops ist durch seine Fläche A und seinen Burgersvektor b gegeben (Trinkaus 1972):

$$\Delta V_L = \underline{A} \underline{b} \quad (\text{II.25})$$

Damit erhalten wir für die asymptotische Streuung eines Loops mit Radius R

$$I_A \sim c \frac{KbR^2}{q^4} \quad (\text{II.26})$$

Dabei haben wir wie in Gleichung (II.24) angenommen, daß das Verschiebungsfeld mit $1/r^2$ abfällt. In der Nähe eines Versetzungsringes, vor allem in seiner Ebene, ist jedoch die Gitterspannung ziemlich konstant. Dies bedeutet, daß dort größere Bereiche die gleiche, geänderte Gitterkonstante besitzen. Da die asymptotische Streuung die Häufigkeitsverteilung der reflektierenden Netzebenenscharen widerspiegelt, verursachen diese Gebiete eine erhöhte Intensität, falls die Loops senkrecht zum Streuvektor orientiert sind. Dieses Intensitätsmaximum ist dem $1/q^4$ -Abfall überlagert. In Abbildung II.3 ist schematisch ein Zwischengitteratomloop und seine asymptotische Streuung multipliziert mit q^4 gezeigt.

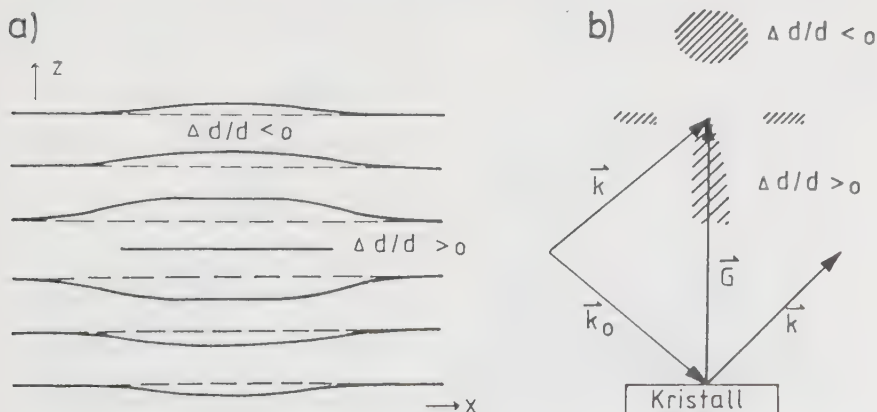


Abb.II.3 Verschiebung der Netzebenen durch ein ZGA-Loop (a) und seine Streuverteilung im reziproken Raum, gewichtet mit q^4 (b).

Die kontrahierten Netzebenenabstände ($\Delta d/d < 0$) führen in radialer Richtung ($\underline{q}/\underline{G}$) zu einem Maximum bei positiven q -Werten. Die aufgeweiteten Gebiete ($\Delta d/d > 0$) sind kleiner und ihre Häufigkeitsverteilung führt zu einer schwachen, ausgeschmierten Streuung bei negativen q -Werten. Die Streuung in angularer Richtung ($\underline{q}_\perp/\underline{G}$) wird von den Netzebenenverkipnungen, d.h. den Scheranteilen bestimmt. Sie wird in erster Linie von den Gebieten zwischen den aufgeweiteten und kontrahierten Bereichen verursacht.

Leerstellenloops vergrößern die Abstände der Netzebenen, die parallel zu ihnen liegen. Ihre Verschiebungsfelder sind mit entgegengesetztem Vorzeichen nahezu gleich dem der ZGA-Loops. Damit zeigen LS-Loops eine Streuverteilung, die spiegelbildlich zu der von ZGA-Loops ist. Dies ermöglicht es, durch Messungen in radialer Richtung zwischen beiden Defekttypen zu unterscheiden. Das Verzerrungsfeld um LS-Loops ist quantitativ in Abbildung II.4 zu sehen (Ohr 1974). Die Größe der Verschiebungen skaliert mit dem Loopradius. Damit ist die

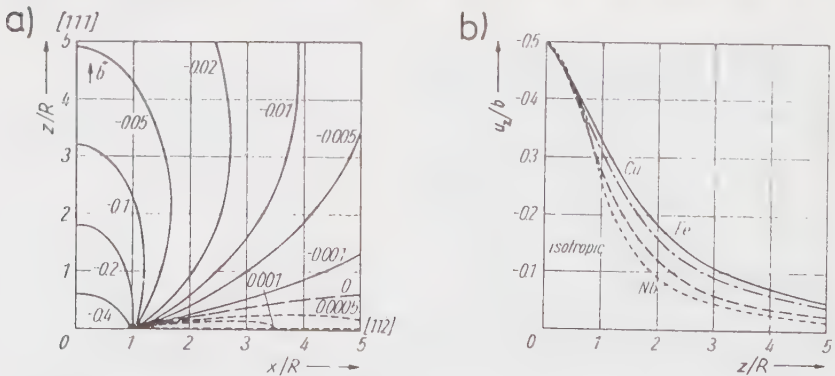


Abb.II.4 z-Komponente des Verschiebungsfeldes u_z für LS-Loops mit $\underline{A}/\underline{111}$ und $\underline{b}/\underline{111}$ (Ohr 1974). z = Abstand senkrecht zur Loopebene.

a) Äquipotentiallinien von u_z in Einheiten von b für Cu.

b) u_z als Funktion von z bei $x = y = 0$.

Lage des Intensitätsmaximums bei $q = q_{\max}$ umgekehrt proportional zur räumlichen Ausdehnung der Versetzungsringe. Aus Abb.II.4 b) läßt sich mit Gleichung (II.23) eine Abschätzung dafür gewinnen. Aus $(K_u) = \text{konstant}$ folgt, daß die Phase in der Umgebung des Wendepunktes ($d^2u_z/dz^2 = 0$) relativ konstant ist. Für Cu ergibt sich damit $q_{\max} = Kb/5R$ und für Al, das der isotropen Kurve sehr nahekommt, $q_{\max} = Kb/3.4R$.

Eine exakte Lösung ist nur numerisch möglich (Ehrhart 1982) und für Frank- und perfekte Loops in Kupfer in Abbildung II.5 zu sehen. Das Maximum liegt bei $Kb/4.4R$ und ist eine gute Bestätigung für die vorhergehende Näherung aus dem zentralen Loopbereich.

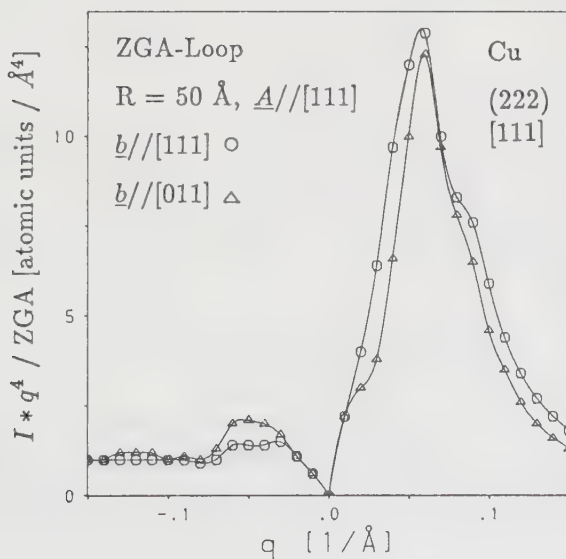


Abb.II.5 Diffuse Intensität multipliziert mit q^4 am (222)-Reflex in [111]-Richtung für ZGA-Loops in Cu (Ehrhart 1982).

II.3.2.1.3. NUMERISCHE BERECHNUNG DER DIFFUSEN STREUUNG

Für beliebige Streuvektoren kann die diffuse Streuung nur numerisch aus Gleichung (II.15) berechnet werden. $\tilde{u}(\underline{K})$ bestimmt man dabei direkt aus der Fouriertransformierten der Kraftverteilung ($\underline{f}(\underline{K})$):

$$\tilde{u}_i(\underline{K}) = \sum_j \Phi_{ij}^{-1}(\underline{K}) \tilde{f}_j(\underline{K}) \quad (\text{II.27})$$

Die dynamische Matrix $\Phi_{ij}(\underline{K})$ wird aus den Kopplungsparametern Φ_{ij}^n durch Fouriertransformation berechnet:

$$\Phi_{ij}(\underline{K}) = \sum_n^{NN} \Phi_{ij}^n e^{i\underline{K} \cdot \underline{r}_n} \quad (\text{II.28})$$

Für die Kopplungsparameter des Al wurden Werte von Gilat (1966) verwendet. Die für Cu stammen von Nicklow (1967).

Für den Nahfeldterm werden die Verschiebungen $\underline{u}_m$ in der Umgebung des Defekts nach Gleichung (II.5) berechnet. Die dabei verwendeten Greenschen Matrizen G_{ij}^{n-m} für Aluminium und Kupfer wurden Arbeiten von Haubold (1974) und Martinsen (1978) entnommen. Eine ausführliche Beschreibung des Rechemas ist bei Haubold (1974) und Dosch (1980) zu finden.

In Abbildung II.6 ist das Ergebnis einer numerischen Rechnung für eine $[110]$ -ZGA-Hantel in Aluminium gezeigt. Es sind die Amplitudenquadrate der Huangstreuung (---), der Nahfeldkorrektur (---) und der Lauestreuung (-x-) sowie die insgesamt diffus gestreute Intensität eingezeichnet. Der Hantelabstand betrug 0.6 Gitterkonstanten. Auf die acht nächsten Nachbarn wurden Kanzakikräfte $f_1 = 2.2 \text{ eV/\AA}$ angewandt (Haubold 1974).

Nahe am Reflex dominiert die Huangstreuung, die vom langreichweitigen Verschiebungsfeld verursacht wird. Der Nahfeldterm wird durch die stark verzerrte Umgebung des Defekts

bestimmt. Bei kleinen q -Werten ist er konstant und kann durch L , den Exponenten des statischen Debye-Waller-Faktors aus Gleichung II.14, ersetzt werden. Der Mischterm aus Huang- und Nahfeldamplitude ist damit proportional zu $\bar{u}(g)$ und wechselt bei $q = 0$ das Vorzeichen. Dieser Streubeitrag ist der Huangintensität überlagert und führt zu einer Asymmetrie in der Streuverteilung. Für aufweitende Defekte (ZGA) erhält man mehr diffuse Intensität bei positiven q -Werten, für kontrahierende dagegen mehr bei negativen. Weiter weg vom Reflex wird die Streuverteilung zunehmend vom Nahfeld der Defekte bestimmt. Der Einfluß des Nahfeldes nimmt mit K zu, da die Projektion der Verschiebungen auf den Streuvektor (Ku) in den Phasenfaktor der Verzerrungsstreuung eingeht. Die Laueamplitude ist ein langsam variierender Term, der bei größeren Streuvektoren und stark verzerrenden Defekten nur geringen Einfluß auf die diffuse Intensität hat.

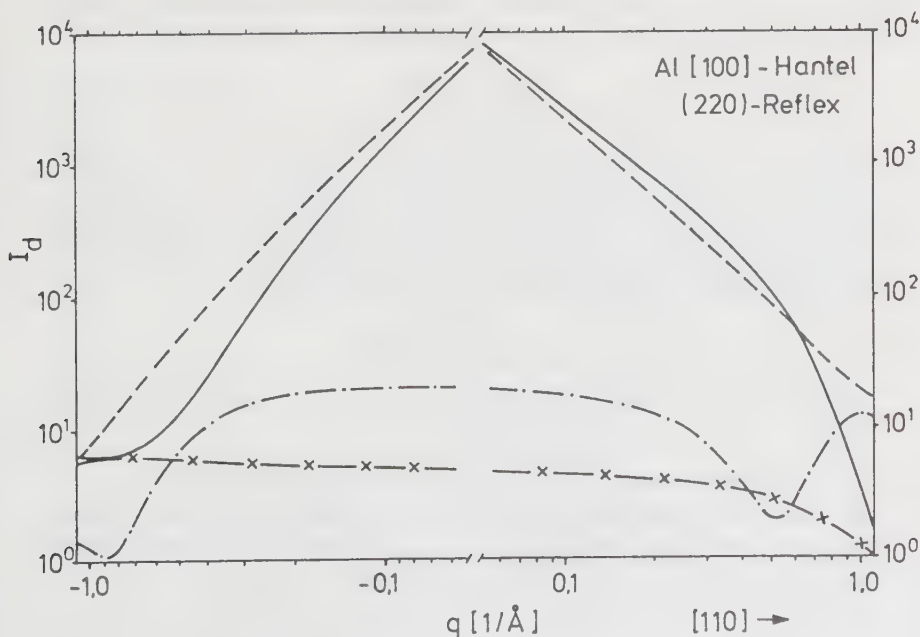


Abb.II.6 Numerisch berechnete Streuintensität für eine [100]-ZGA-Hantel in Al in der Umgebung des (220)-Reflexes in [110]-Richtung (—). Amplitudenquadrate der Huangstreuung (---), der Nahfeldkorrektur (-.-) und der Lauestreuung (-x-).

II.3.2.2. DEFEEKTORRELATIONEN

Bisher haben wir zufallsverteilte Defekte angenommen und die diffuse Intensität durch inkohärente Addition der Streubeiträge der einzelnen Defekte erhalten. Jetzt soll der Einfluß von Defektkorrelationen auf die diffuse Streuung untersucht werden.

Wir beschränken uns auf kleine Verzerrungen $\delta \underline{r}_m$ und berücksichtigen nur den linearen Term $i \underline{K} \delta \underline{r}_m$ in der Entwicklung der Streuwellen nach den Verschiebungen. Unter Vernachlässigung der Laueamplitude erhält man aus Gleichung (II.10) für die diffuse Streuung

$$I_d(\underline{K}) = f^2 \left| \sum_m i \underline{K} \delta \underline{r}_m e^{i \underline{K} \underline{r}_m} \right|^2 \quad (\text{II.29})$$

Die Verschiebung des Atoms m ersetzen wir durch die lineare Überlagerung der einzelnen Defektbeiträge (Gleichung II.3):

$$\delta \underline{r}_m = \sum_n c_n \underline{u}_{mn} \quad (\text{II.30})$$

Dabei haben wir Besetzungszahlen c_n eingeführt. $c_n = 1$ falls der Ort $\underline{r}_n$ von einem Defekt besetzt ist, sonst 0. Die diffuse Streuung läßt sich dann als Produkt aus einem Korrelations- und einem Verzerrungsterm darstellen:

$$I_d(\underline{q}) = N f^2 K^2 \left| \tilde{c}(\underline{q}) \right|^2 \left| \tilde{u}(\underline{q}) \right|^2 \quad (\text{II.31})$$

mit
$$\tilde{c}(\underline{q}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n c_n e^{i \underline{q} \underline{r}_n} \quad (\text{II.32})$$

Im folgenden wird die Richtungsabhängigkeit von $\tilde{c}(\underline{q})$ vernachlässigt. Für zufällig verteilte Defekte ist das Quadrat der Fouriertransformierten der Konzentrationsfluktuationen $|\tilde{c}(\underline{q})|^2 = c(1-c)$ und für kleine Konzentrationen c .

Es ist vorteilhaft, $|\tilde{c}(q)|^2$ in einen konstanten Term mit der mittleren Defektkonzentration c und in einen q -abhängigen Ausdruck aufzuteilen, der die Korrelationen beschreibt:

$$|\tilde{c}(q)|^2 = c(1-c) + \sum_{\rho \neq 0} \epsilon(\rho) e^{iq\rho} \quad (\text{II.33})$$

mit $\rho = \underline{r}_n - \underline{r}_m$

Die Korrelationsfunktion $\epsilon(\rho)$ ist durch die Wahrscheinlichkeit $P_{DD}(\rho)$ gegeben, ein Defektpaar mit Abstand ρ zu finden:

$$\epsilon(\rho) = P_{DD}(\rho) - c^2 \quad (\text{II.34})$$

mit
$$P_{DD}(\rho) = \overline{c_n c_m}^\rho \quad (\text{II.35})$$

Sie ist nur für nicht zufällig verteilte Defekte von Null verschieden.

Die diffuse Streuung an Defekten, die in Kaskaden korreliert sind, kann analog zur Kleinwinkelstreuung an solchen Gebilden behandelt werden. Der einzige Unterschied liegt darin, daß die diffuse Intensität in der Nähe der Braggreflexe an die Verschiebungen gekoppelt ist. Deshalb tritt in Gleichung (II.31) ein q -abhängiger Defektstrukturfaktor $(\tilde{u}(q))$ auf, der die Streuung am Verzerrungsfeld des Einzeldefekts beschreibt.

Wenn die Funktion $c_K(\underline{r})$ die Defektverteilung in der Kaskade wiedergibt, so läßt sich der Korrelationsterm darstellen als

$$|\tilde{c}(q)|^2 = c(1-c) + c(z-1) \underbrace{\left[\frac{1}{V_K} \int c_K(\underline{r}) e^{iq\underline{r}} dV \right]^2}_{=:\Phi^2} \quad (\text{II.36})$$

mit $V_K = \int c_K(\underline{r}) dV$

und z = Anzahl der Defekte pro Kaskade

Der q -abhängige Teil wird durch das Quadrat der Funktion Φ

beschrieben. Sie stellt die normierte Fouriertransformierte der Defektverteilung dar. Sind die Defekte homogen in Kugeln mit Radius R verteilt, so erhält man

$$\Phi_{Kugel}^2(q) = \left[3 \frac{\sin(qR) - (qR) \cos(qR)}{(qR)^3} \right]^2 \quad (\text{II.37})$$

Für nicht kugelsymmetrische Ladungsverteilungen kann Φ nur numerisch berechnet werden. In Abbildung II.7 ist $\Phi^2(q)$ für eine Kugel und für ein Rotationsellipsoid mit gleichem Volumen und einem Halbachsenverhältnis 2:1, gemittelt über alle Orientierungen, gezeigt.

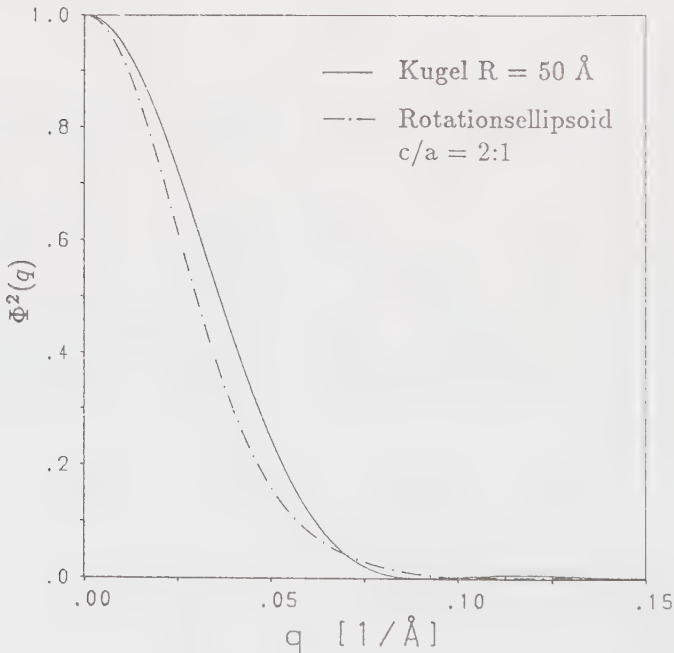


Abb.II.7 $\Phi^2(q)$ für eine Kugel mit $R = 50 \text{ \AA}$ (—) und ein Rotationsellipsoid mit gleichem Volumen und dem Halbachsenverhältnis 2:1, gemittelt über alle Orientierungen (-.-).

Die Streufunktion des Ellipsoids ist ausgeschmierter als die der Kugel, da die Abstandsverteilung der Defektpaare über einen größeren Bereich ausgedehnt ist. Ausführlicheres über Kleinwinkelstreuung ist z.B. bei Porod (1982) zu finden.

Für größere q -Werte geht $\Phi^2(q)$ gegen Null und man erhält die Huangstreuung von zufällig verteilten Einzeldefekten. Sehr nahe am Braggreflex ($q \rightarrow 0$) wird $\Phi^2 = 1$, und die Huangstreuung ist um die Anzahl der Defekte in der Kaskade z erhöht.

Überlappen sich die Kaskaden, ohne daß die Defekte in diesen Gebieten rekombinieren oder agglomerieren, so erhöht sich lediglich die mittlere Defektkonzentration. Die Paarkorrelationsfunktion bleibt dagegen erhalten. Kommt es im Überlappbereich zur Auslöschung, so vermindert sich der Kontrast und $\epsilon(\rho)$ nimmt ab.

Wesentlich für die Gültigkeit der Gleichung (II.31) ist, daß die Abspaltung des Korrelationsterms von den Verzerrungen nur möglich ist, so lange der lineare Term (Ku) in der Entwicklung nach den Verschiebungen den dominierenden Streubeitrag liefert, d.h. bei kleinem q und kleinem δr_m . Liegen die Defekte so dicht zusammen, daß $K\delta r_m > 1$ ist, dann können $\tilde{c}(q)$ und $\tilde{u}(q)$ nicht mehr separiert werden. Es erfolgt vielmehr der Übergang zur asymptotischen Streuung, die nur mehr linear von der Defektstärke abhängt (s. Gleichung II.24).

Im folgenden soll kurz abgeschätzt werden wie hoch die Defektkonzentration in der Kaskade sein darf, damit die Streuung nach Gleichung (II.31) mit einer Korrelationsfunktion behandelt werden kann. Bei linearer Superposition der Verschiebungsfelder von Einzeldefekten kann das Verschiebungsfeld einer Kaskade mit der Defektdichte c_K und Radius R

näherungsweise beschrieben werden durch

$$u(r) = P \int \frac{c_K(\underline{r}')}{|\underline{r} - \underline{r}'|^2} dV' \quad (\text{II.38})$$

Die Größe P gibt dabei die Defektstärke an. Durch Integration erhält man

$$u(r) = P \left(\frac{4\pi}{3} R^3 \right) c_K \begin{cases} r/R^3 & \text{für } r \leq R \\ 1/r^2 & \text{für } r > R \end{cases} \quad (\text{II.39})$$

Die Funktion $u(r)$ ist in Abbildung II.8 dargestellt. Für $r < R$ nimmt sie linear zu. Die Steigung ist durch das Produkt aus Defektstärke und Konzentration gegeben. Außerhalb der Kaskade fällt das Verschiebungsfeld mit $1/r^2$ ab und ist zu z und P proportional.

Ist die Defektkonzentration oder die Defektstärke in der Kaskade zu groß, so werden die Verschiebungen größer als der kritische Wert u_{cl} , für den gilt $Ku_{cl} = 1$. Die Streuung kann dann nicht mehr nach Gleichung (II.31) als Produkt aus $\tilde{c}(q)$ und $\tilde{u}(q)$ dargestellt werden.

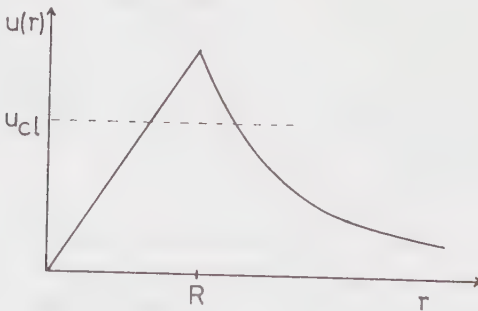


Abb.II.8 Verschiebungsfeld $u(r)$ einer Kaskade mit Radius R und homogener Defektverteilung. (u_{cl} = Grenzwert für stark verzerrende Agglomerate).

III. EXPERIMENTELLES

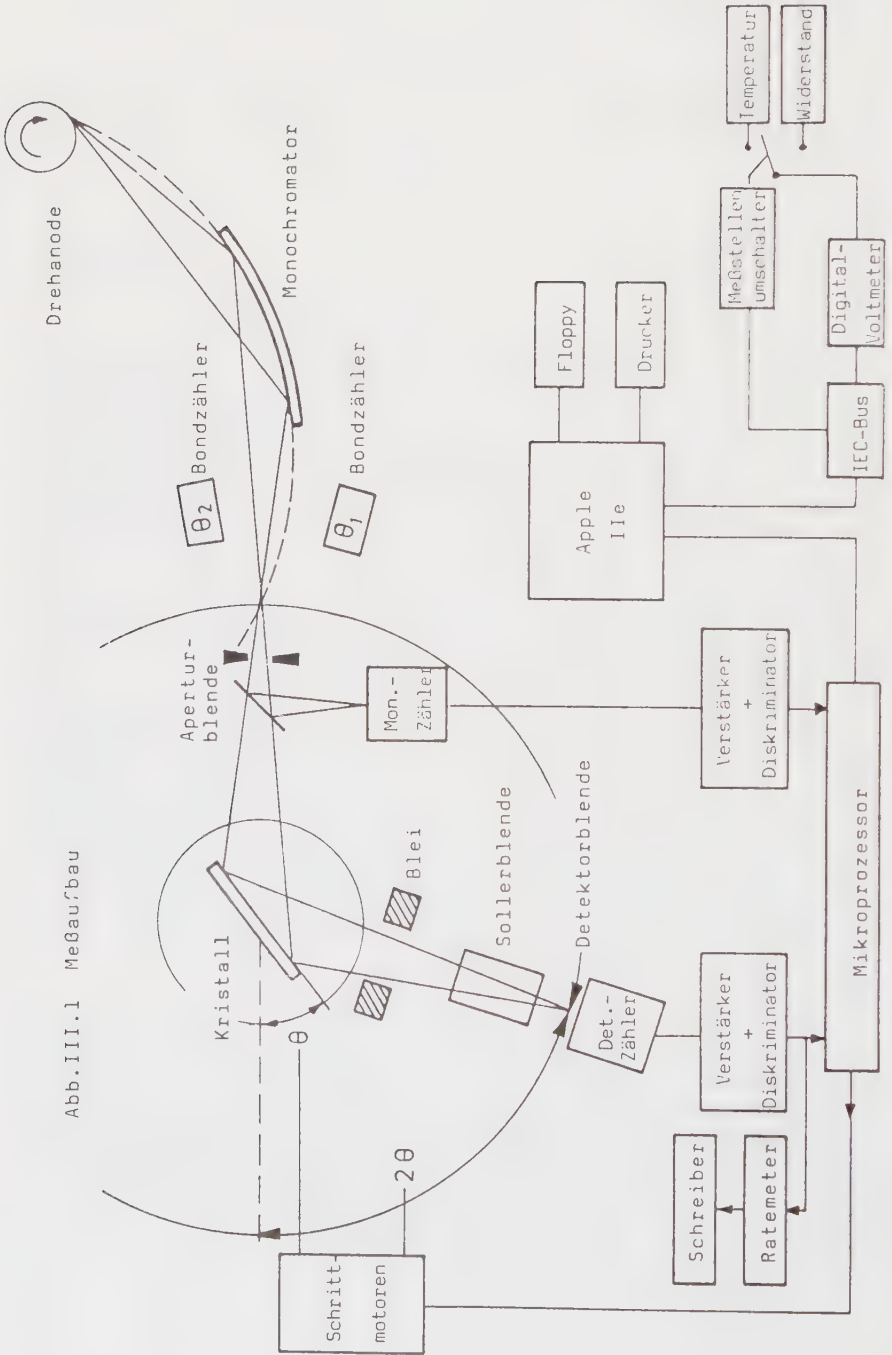
III.1. MESSAUFBAU

Der Meßaufbau ist schematisch in Abbildung III.1 dargestellt. Die Röntgenstrahlung wurde von einer Drehanodenanlage der Firma Rigaku Denki mit einer maximalen Verlustleistung von 6 kW erzeugt. Die optische Fokusgröße unter einem Abstrahlwinkel von 6° betrug $0.1 \cdot 10 \text{ mm}^2$. Aus der verwendeten Kupfer- bzw. Molybdänstrahlung wurde mit einem Quarzkristall ($10\bar{1}1$ - orientiert) die $K\alpha_1$ -Linie ausgesondert. Um trotz guter Wellenlängenauflösung hohe Intensitäten zu erhalten, wurden gebogene Monochromatoren verwendet, die das divergente Strahlenbündel in einer Richtung fokussieren.

Der Monochromator für Cu-Strahlung ist auf den Radius 1 m gebogen und auf den doppelten Radius geschliffen (Prinzip nach Johannson 1933). Für die $K\alpha_1$ -Strahlung ($\lambda = 1.5405 \text{ \AA}$) beträgt der Beugungswinkel $2\theta_M = 26.5^\circ$. Der Monochromatorkristall für Mo-Strahlung war auf den Radius 2.16 m gebogen, aber nicht geschliffen (Prinzip nach Johann 1931). Der Reflexionswinkel für die Mo- $K\alpha_1$ -Linie ($\lambda = 0.7093 \text{ \AA}$) ist $2\theta_M = 12.2^\circ$.

Für Kupferstrahlung wird, wegen der starken Luftabsorption, der Weg zwischen Brennfleck und Monochromator (46 cm) und Monochromator und Fokusbild (46 cm) zum größten Teil evakuiert. Eine Aperturblende begrenzt die Divergenz des einfallenden Strahlenbündels. Dahinter streut eine dünne Folie einen Bruchteil der Strahlung zum Monitorzähler, der die Primärintensität kontrolliert. Der Kristall sitzt in einem

Abb. III.1 Meßaufbau



Heliumkryostaten auf der Achse eines Zweikreisdiffraktometers (D500 der Firma Siemens). Eine Sollerblende begrenzt die vertikale Divergenz der gestreuten Strahlung, die hinter der Detektorblende mit einem Zähler registriert wird. Eine dicke Bleiblenke reduziert den radioaktiven Untergrund der neutronenbestrahlten Proben.

Das Diffraktometer wird von zwei Schrittmotoren angetrieben, mit denen Probe und Detektor mit einer Genauigkeit von $\Delta\theta = 1/1000^\circ$ bzw. $\Delta 2\theta = 1/500^\circ$ positioniert werden können. Zur Justierung steht das Goniometer auf einem Kreuzschlitten, der eine Translation senkrecht zum einfallenden Strahl und eine Drehung um die Aperturblende erlaubt.

Die Impulse der Szintillationszähler (Fa. Siemens) werden verstärkt und anschließend so diskriminiert, daß höhere Harmonische der Meßstrahlung, Rauschen und andere Störstrahlungen unterdrückt werden. Über ein Ratemeter und einen Schreiber können z.B. Braggprofile direkt aufgenommen werden. Messungen in beliebigen Richtungen des reziproken Raumes werden von einem Mikroprozessorsystem durchgeführt, das die Schrittmotoren steuert und die Zählraten ausliest. Das Meßprogramm übergibt ein Apple-IIe-Computer, der die gemessene Streukurve unmittelbar auf seinem Bildschirm darstellt. Die Daten werden auf einem Drucker ausgegeben und für die Weiterverarbeitung auf Disketten abgespeichert.

Über einen IEC-Bus sind ein automatischer Meßstellenumschalter (Burster) und ein Digitalvoltmeter (Keithley) mit dem Apple verbunden. Sie dienen zur Messung des Probenwiderstandes und der Temperatur im Kryostaten.

Für die Gitterkonstantenmessung mit der Bondmethode sind bei großen Winkeln, nahe $2\theta = 180^\circ$, zwei zusätzliche Zähler aufgebaut, da diese Positionen (θ_1 , θ_2), wegen der experimentellen Aufbauten, mit dem Detektorzähler nicht zugänglich sind.

III.2. MESSKRYOSTAT

Der Heliumdurchflußkryostat, mit dem die Messungen durchgeführt wurden, ist in Abbildung III.2 wiedergegeben. Er entspricht im wesentlichen dem Kryostaten, der bei Grasse (1980) genauer beschrieben ist. Verbesserungen wurden vor allem an den Röntgenfenstern und an der Probenkammer vorgenommen und werden im folgenden beschrieben: Das innere und äußere Röntgenfenster wurden so abgeändert, daß die gestreute Strahlung auch bei großen Winkeln gemessen werden kann. Das kalte, innere Fenster besteht aus Mylarfolie (0.2 mm) und wurde mit einer Mischung aus dem Epoxidharz Araldit AW 106 und dem Härter HV 9530 geklebt. Für das äußere Fenster wurde Hostafan (0.1 mm) verwendet und mit Uhu hart geklebt.

Eine Membranpumpe saugt durch den Vakuummantelheber kaltes Gas aus einer Vorratskanne mit flüssigem Helium durch den Kryostaten. Dosierventile in den beiden Abgasleitungen regeln den Heliumstrom und damit die Temperatur in der Probenkammer.

Zwei Schnitte durch die Probenkammer sind in Abb.III.3 zu sehen. Der Probenhalter wird an eine V2A-Kapillare geschraubt und durch eine konzentrisch zulaufende Teflonführung in die Probenkammer geschoben. Hinter dem Einkristall befindet sich in einer Degussitkapillare die Drahtprobe zur Messung des elektrischen Restwiderstandes. Probenhalter und Schrauben sind aus einer Al-Mg-Legierung gefertigt, die durch die Neutronen nur sehr wenig aktiviert wird. Die Temperatur in der Probenkammer wird mit einem Platin- (Pt-100) und einem Germaniumwiderstand gemessen, die in Bohrungen des Probenhaltereinsatzes eingepaßt sind. Das Ganze ist von einem Heiz- und einem Kühlkörper umgeben, die so konstruiert sind, daß beim Temperprogramm schnell hochgeheizt und wieder abgekühlt werden kann. Das Erholungsprogramm bis 300 K konnte so im Kryostaten durchgeführt werden, ohne die Probe auszubauen.

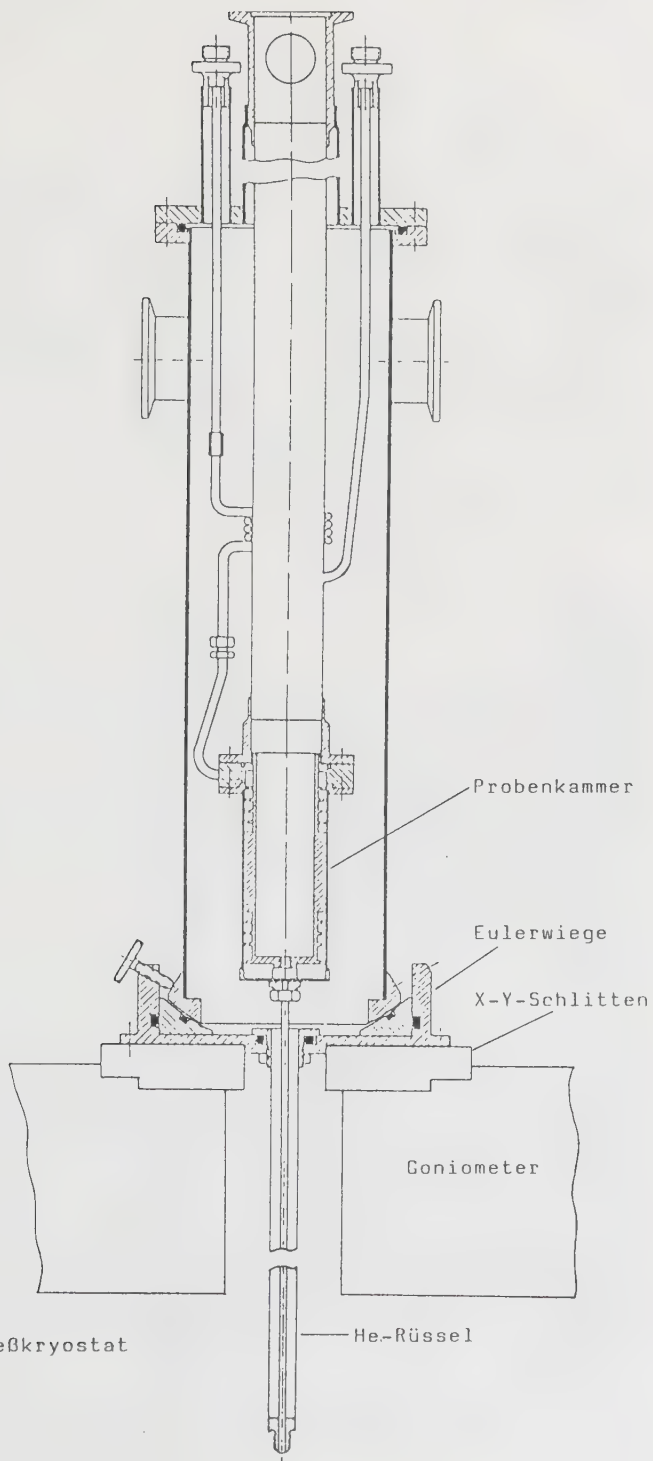


Abb.III.2 Meßkryostat

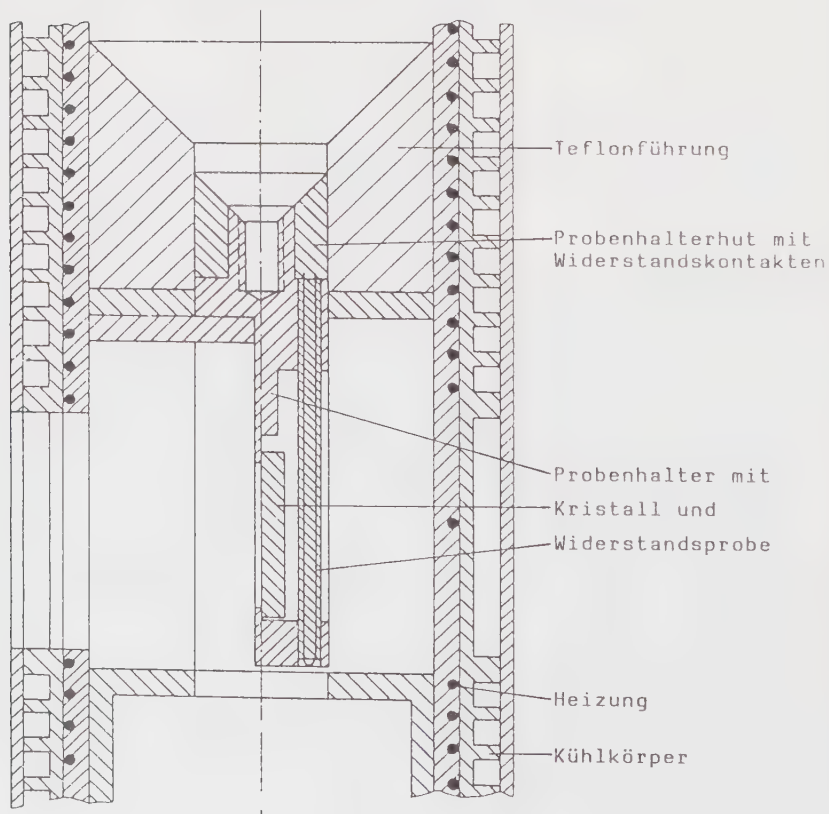
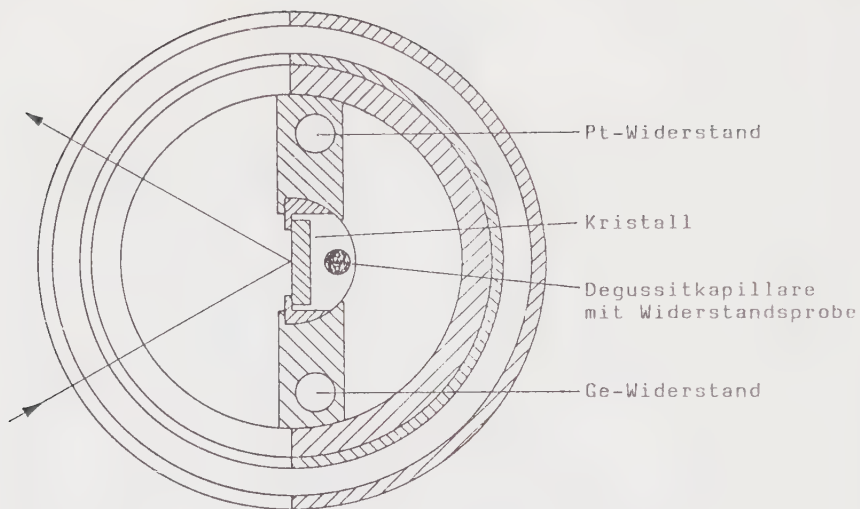


Abb.III.3 Probenkammer des Meßkryostaten

III.3. MESSABLAUF

Nach dem Umschleusen wird ein isochrones Ausheilprogramm durchgeführt. Dazu wird die Probe jeweils für 10 Minuten auf immer höhere Erholungstemperaturen gebracht und dann wieder auf die Meßtemperatur von 10 K abgekühlt. Nach jedem Tempereschritt wird der elektrische Restwiderstand, die Gitterkonstante und die diffuse Streuung gemessen. Als Referenz dienen die Werte nach vollständiger thermischer Erholung.

III.3.1. ELEKTRISCHE RESTWIDERSTANDSMESSUNG

Der Widerstand wurde mit der Vierpunktmethode gemessen. Durch die äußeren Kontakte wird ein konstanter Strom durch die Drahtproben geschickt und der Spannungsabfall an den inneren Kontakten abgegriffen. Die Widerstandsbeiträge der Zuleitungen und der Übergangswiderstand der Kontakte werden dadurch eliminiert. Der Einfluß von Thermospannungen wird durch Umpolen der Stromrichtung verringert. Nach dem Fluten der Probenkammer mit flüssigem Helium wird der elektrische Restwiderstand mehrmals automatisch vom "Apple" gemessen.

III.3.2. GITTERKONSTANTENMESSUNG

Die Gitterkonstante wurde nach Bond (1960) bestimmt. Dazu wird der Probenwinkel für einen bestimmten Braggreflex auf beiden Seiten des Primärstrahles gemessen und daraus der Braggwinkel θ ermittelt. Die relative Gitterparameteränderung ist gegeben durch $\Delta a/a = (\cot \theta) \Delta \theta$ und daher im Rückstrebereich am größten. Die Messungen wurden deshalb an den höchsten, noch zugänglichen Braggreflexen durchgeführt. Für den Aluminium (880)-Reflex ($\theta_{880} = 85^\circ$) ergibt sich aus der Ganggenauigkeit des Goniometers eine theoretische Auflösung

für $\Delta a/a$ von $\pm 1.7 \cdot 10^{-6}$, die jedoch wegen systematischer Fehler in der Praxis nicht erreicht wird. Für jeden Temperpunktt wurde die Gitterkonstante je einmal vor und nach der Messung der diffusen Streuung bestimmt und daraus das Mittel gebildet.

III.3.3. MESSUNG DER DIFFUSEN STREUUNG

Für gute Messungen der diffusen Streuung möchte man einerseits möglichst gute Auflösung, andererseits möglichst viel Intensität haben. Beide Forderungen können zwar nicht gleichzeitig erfüllt werden, sind aber für verschiedene Bereiche im reziproken Gitter auch nicht von gleicher Bedeutung. Nahe am Reflex ist gute Auflösung erwünscht, da sich dort die diffuse Streuung räumlich rasch ändert. Für größere q -Werte wird das Signal-zu-Untergrundverhältnis jedoch sehr klein, und hohe Intensität ist gefordert, um eine gute Zählstatistik zu erhalten. Dafür sind in diesem Bereich die Anforderungen an das Auflösungsvermögen nicht so groß. Die Messungen wurden deshalb auf die verschiedenen q -Bereiche optimiert, je nachdem welche Defekteigenschaften studiert werden sollten (s. Abschnitt II.3.2.).

Grundsätzlich ist ein möglichst geringer Untergrund erwünscht. Die niedrige Meßtemperatur von 10 K unterdrückt weitgehend die thermisch diffuse Streuung. Der radioaktive Untergrund wird durch die Bleibende etwa um das 6-fache reduziert und war damit ungefähr so groß wie das elektronische Rauschen von ca. 4 Impulsen pro Minute. Die Comptonstreuung liefert den Hauptbeitrag zum Untergrund bei größeren q -Werten und begrenzt damit in diesem Bereich die Meßgenauigkeit. Sie nimmt mit dem Streuvektor zu und hätte nur mit größerem Aufwand, z.B. durch Analysatorkristalle oder Halbleiterzähler, zum Teil eliminiert werden können.

Die diffuse Streuintensität wurde in der Umgebung von verschiedenen Braggreflexen in hochsymmetrischen Richtungen des reziproken Gitters Punkt für Punkt gemessen. Durch eine 2:1 Bewegung von Detektor (2θ) und Probe (θ) wird der Streuvektor $\underline{K}$ parallel zum reziproken Gittervektor $\underline{G}$ verschoben (radialer Scan). Eine Messung senkrecht zu $\underline{G}$ (angularer Scan) wird in erster Näherung durch eine Drehung der Probe allein erreicht. Vor jeder Messung der diffusen Intensität wurde der Braggreflex zur Kontrolle in radialer und angularer Richtung am Schreiber aufgenommen. Die Meßdauer eines Scans betrug 1 bis 12 Stunden, je nach Größe des Meßbereiches im reziproken Gitter und angestrebter Genauigkeit.

Nahe am Reflex wird die gemessene Streuintensität zunehmend vom Auflösungsvermögen beeinflußt. Deshalb wurden in radialer Richtung, über einen kleinen q -Bereich, zusätzlich Messungen mit schmälere Detektorblende durchgeführt, um näher an den Reflex heranmessen zu können.

III.4. AUFLÖSUNG

Hat man den Betrag des einfallenden Wellenvektors k_0 durch Monochromatisierung festgelegt, so wird bei elastischer Streuung das Auflösungsvolumen durch die Winkeldivergenzen bestimmt. Für die Experimente wurde die "quasifokussierende" Anordnung (Peisl 1975) gewählt, die in Abbildung III.4 zu sehen ist. Das Auflösungselement im reziproken Raum erhält man durch Konstruktion der Streuvektoren aus allen relevanten Strahlengängen. In der Meßebeane wird es durch die Öffnungswinkel der Aperturblende $\delta\theta$ und der Detektorblende $\delta 2\theta$ bestimmt, wenn man die geringe Breite des Strichfokusbildes vernachlässigt (Abb.III.5). Es ist in guter Näherung ein Parallelogramm mit den Seiten $k\delta\theta$ und $k\delta 2\theta$ und einem Winkel $90^\circ + \theta$.

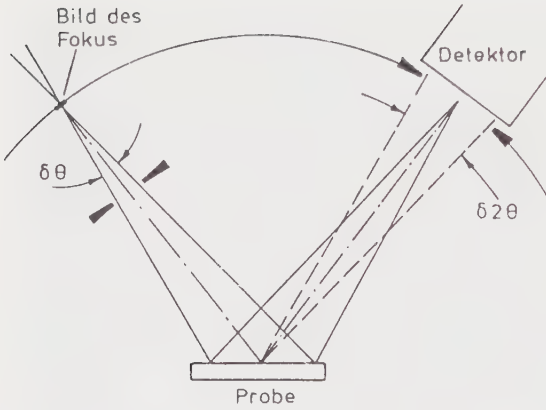


Abb.III.4 Divergenzen in der Meßebene beim quasifokussierenden Strahlengang.

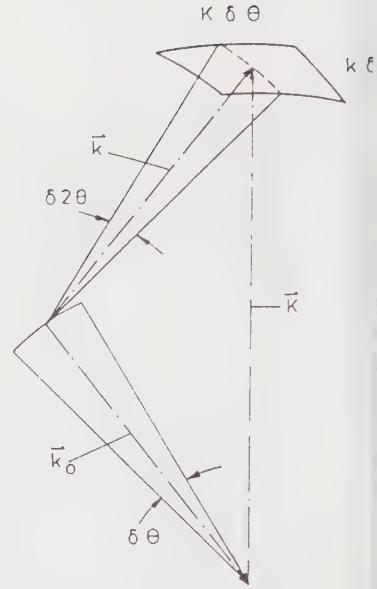


Abb.III.5 Auflösungsvolumen im reziproken Raum in der Meßebene.

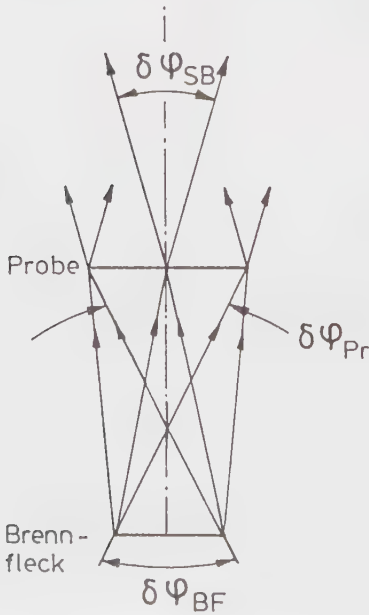


Abb.III.6 Vertikale Divergenzen.

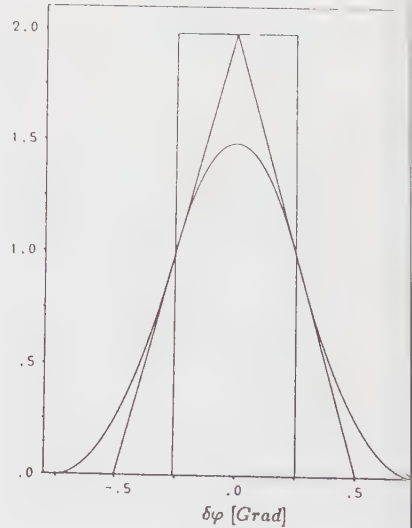


Abb.III.7 Vertikale Auflösungsfunktion.

Senkrecht zur Meßebene wird das Auflösungsvolumen durch die vertikalen Divergenzen der einfallenden und reflektierten Strahlenbündel begrenzt (Abb.III.6). Die Verhältnisse in dieser Richtung sind etwas komplizierter, da nicht fokussiert wird und der Brennfleck strichförmig ausgedehnt ist. Die einfallende Divergenz ist durch die Höhe von Probe und Brennfleck (je 10 mm) und den Abstand dazwischen (112 cm) gegeben ($\delta\varphi_{Pr} = 0.5^\circ$, $\delta\varphi_{BF} = 0.5^\circ$). Die ausfallende Divergenz wird durch eine Sollerblende ($\delta\varphi_{SB} = 0.5^\circ$) begrenzt. Durch Konstruktion aller Strahlengänge erhält man die Gewichtsfunktion des Auflösungsvolumens in vertikaler Richtung (Abbildung III.7). Die verschiedenen Divergenzen verschmieren die Rechtecksfunktion in eine "Gauß"-ähnliche Kurve. Innerhalb der Halbwertsbreite von $\delta\varphi_{1/2} = 0.63^\circ$ liegen 78% des Kurvenintegrals.

Die verwendeten Winkeldivergenzen und die daraus berechneten Projektionen des Auflösungsvolumens auf die drei Hauptachsen sind in Tabelle III.1 zusammengestellt. In vertikaler Richtung sind die Maximalwerte $\delta\varphi_{max} = \delta\varphi_{Pr} + \delta\varphi_{BF} + \delta\varphi_{SB}$ und $\delta q_{vert} = k_0 \delta\varphi_{max}$ aufgetragen.

Strahlung	Divergenz (Grad)			Auflösung ($\text{\AA}^{-1}$)			Messung
	$\delta\theta$	$\delta 2\theta$	$\delta\varphi_{max}$	δq_{rad}	δq_{ang}	δq_{vert}	
Mo-K α_1	0.1	0.15	1.5 (0.05)	0.02 (0.007)	0.015	0.24	Al 440
				0.018 (0.003)		0.106	Al 220
Cu-K α_1	0.2	0.28	1.5 (0.05)	0.016 (0.003)	0.019	0.106	Al 222
				0.014 (0.002)		0.106	Cu 222

Tabelle III.1 Verwendete Winkeldivergenzen und Auflösungsvermögen (Werte in Klammern: Messungen mit höherer radialer Auflösung).

Insbesondere in der Nähe der Braggreflexe, wo die diffus gestreute Intensität divergiert, muß der Einfluß durch das endliche Auflösungsvolumen berücksichtigt werden. Da seine vertikale Ausdehnung stark dominiert (s. Tab.III.1), genügt es für die Berechnung der Auflösungskorrektur, die Integration nur in dieser Richtung durchzuführen. Für ein theoretisches $1/q^2$ -Verhalten der diffusen Streuung ist dieser Auflösungseffekt in Abbildung III.8 gezeigt. Eine analytische Formel für grobe Abschätzungen der Auflösungseffekte läßt sich angeben, wenn man die eigentliche Gewichtsfunktion durch ein Rechteck approximiert (z.B. mit $q_{\text{vert}} = k_0 \delta\varphi_{1/2}$):

$$I_{\text{gem}} = (2q/\delta q_{\text{vert}}) \arctan(\delta q_{\text{vert}}/2q) I \quad (\text{III.1})$$

für $I \sim 1/q^2$

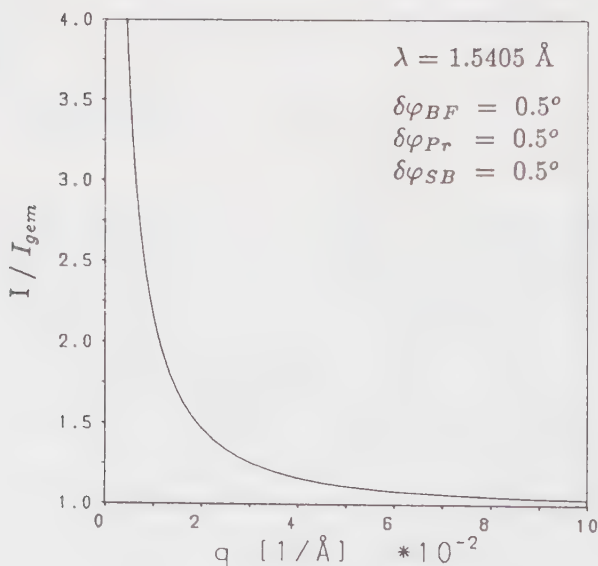


Abb.III.8 Auflösungskorrektur für Messungen mit Cu-K α_1 -Strahlung für $I \sim 1/q^2$.

In der Praxis muß jedoch I_d aus der gemessenen Streuverteilung durch ein iteratives Verfahren mit der richtigen Gewichtsfunktion berechnet werden, d.h. es wird zunächst über I_{gem} integriert, dann auf die neuen Werte korrigiert und für diese das gleiche Verfahren wiederholt, bis keine Änderungen mehr auftreten.

III.5. ABSOLUTINTENSITÄT

Die diffuse Intensität erhalten wir aus der gemessenen Streuverteilung durch Subtraktion der Referenzmessung am völlig ausgeheilten Kristall. Schwankungen der Primärintensität werden vor der Differenzbildung durch Normierung auf gleiche Monitorzählraten korrigiert. Der von der Primärintensität unabhängige Untergrund wird vorher abgezogen.

Vernachlässigt man wegen der geringen Konzentration der Defekte ihren Einfluß auf die thermisch diffuse Streuung (Eisenriegler 1971), so wird der von der Primärintensität abhängige Untergrund durch die Differenzbildung eliminiert. Auch der statische Debye-Waller-Faktor wurde wegen der niedrigen Defektkonzentration nicht berücksichtigt. Die Umrechnung der Zählraten in absolute Einheiten geschieht über die Streuintensität einer amorphen Probe (Polystyrol), die bei gleicher Streugeometrie wie der Kristall gemessen wird (Sparks und Borie, 1966). Die Polarisierung der Strahlung durch Monochromator und Probe sowie die effektive Eindringtiefe müssen dabei berücksichtigt werden. Insbesondere für Molybdän-Strahlung sind die Absolutintensitäten, durch die hohe Eindringtiefe und mögliche Abschattungseffekte für das schwach absorbierende Polystyrol, mit größeren Fehlern behaftet. Wichtige Daten für die Auswertung sind in den Tabellen III.2 und III.3 zusammengefaßt. Die meisten Zahlenwerte wurden den International Tables for X-Ray Crystallography (1968) entnommen.

Probe	Gitterk. a (Å)	elastische Konstanten (eV/Å ³)			Debye-Temp. T _D (K)
		c ₁₁	c ₁₂	c ₄₄	
Al	4.03	0.7135	0.3864	0.1972	414
Cu	3.60	1.100	0.796	0.510	310

Tabelle III.2

Probe	Reflex	Strahlung	Θ ₀	M	F	Z _{eua}
Al	440	Mo	29.9	0.123	13.70	35.2
	220	Cu	32.7	0.013	29.14	153
	222	Cu	41.2	0.046	25.25	173
Cu	222	Cu	47.8	0.033	46.91	440

$$F = \exp(-M) \cdot 4 \cdot f$$

$\exp(-M)$ thermischer Debye-Waller-Faktor

$$I(\text{e.u.a.}) = Z_{\text{eua}} \cdot (\text{Probenzählrate} / \text{Polystyrolzählrate bei } \Theta_p)$$

(Θ_p = 100° bei Cu- bzw. 120° bei Mo-Strahlung)

Tabelle III.3

Die Röntgenanlage wurde mit 50 bis 55 kV und 100 mA betrieben. Die Intensitätsschwankungen über mehrere Tage waren kleiner als 10%. Die Polystyrolzählrate betrug bei normaler Auflösung rund 1000 Impulse / 3 min, sowohl bei Mo- als auch bei Cu-Strahlung.

III.6. BESTRAHLEN UND UMSCHLEUSEN

Die Neutronenbestrahlungen wurden in der Tieftemperaturbestrahlungsanlage (TTB) (Doll 1964) des Forschungsreaktors München bei 4.6 K durchgeführt. Der Aufbau ist schematisch in Abbildung III.9 dargestellt. Bestrahlt wurde direkt an Stelle eines Brennelements im Reaktorkern. Der Fluß schneller Neutronen ($E > 0.1$ MeV) lag bei $2.87 \cdot 10^{13}$ n/cm². Der gesamte Neutronenfluß betrug $9.58 \cdot 10^{13}$ n/cm² (Wallner 1987).

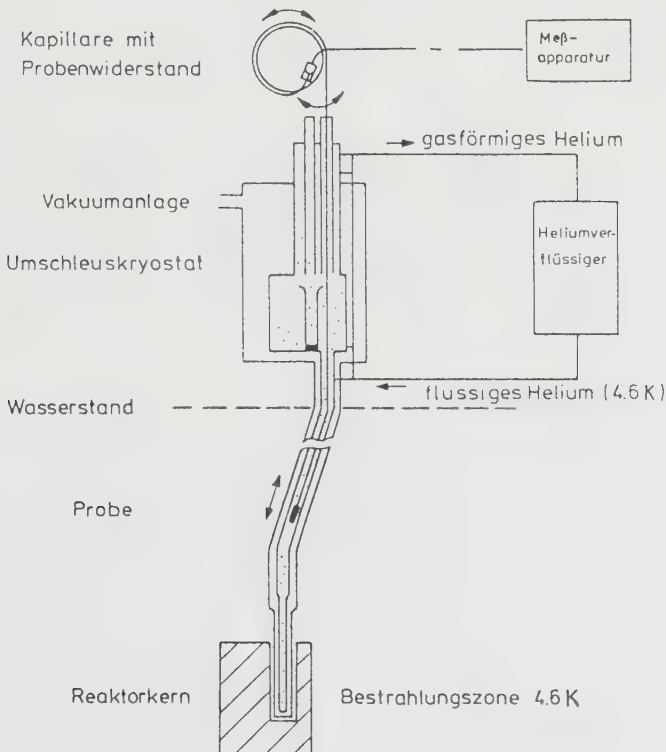


Abb.III.9 Schema der Tieftemperatur-Bestrahlungen am FRM.

Jeweils zwei Proben werden zusammen in einer dünnen durchlöchernten Aluminiumhülse (ca. 10 g) bestrahlt, so daß die Wärmezufuhr durch Gammastrahlung ausreichend weggekühlt werden kann. Die Hülse ist an eine 13 m lange V2A-Kapillare angeschraubt und wird durch den mit flüssigem Helium gekühlten TTB-Rüssel in den Reaktorkern geschoben. Am Kapillarenende, knapp über den Proben, befindet sich in einem Degussitröhrchen ein reiner Aluminiumdraht, mit dem während der Bestrahlung die Widerstandsdosiskurve $\rho(\Phi t)$ automatisch aufgenommen wird (Rosner 1979). Mit einem Kupfer-Konstantan-Thermoelement wird an dieser Stelle zusätzlich die Temperatur kontrolliert.

Nach einer Abklingzeit von etwa zwei Tagen wird die Hülse in den Umschleuskryostaten hochgezogen und vor dem Abschrauben der Kapillare nochmals der Widerstand gemessen. Der Umschleuskryostat wird dann von der TTB abgezogen und die Hülse mit den Proben in eine Lagerkanne transferiert. Die Temperatur wird dabei mit einem Thermoelement überwacht. Eine ausführliche Beschreibung ist bei Grasse (1980) zu finden.

Nach mehreren Wochen Abklingzeit werden die Proben einzeln aus der Lagerkanne über eine Weiche in den Meßkryostaten umgeschleust (Abb.III.10). Durch ein doppelwandiges, evakuiertes Rohr wird die Lagerkanne an die Weiche angekoppelt. Eine Pumpe am Kryostaten und eine an der Weiche saugen flüssiges Helium aus den Kannen in die Probenkammer und den Umschleusweg. Mit einer langen V2A-Kapillare mit Thermoelement und Führung wird dann eine Probe in der Lagerkanne angeschraubt und in die Meßposition transferiert. Mit dieser Anordnung konnten wir, mit einer Ausnahme, alle Proben in den Röntgenkryostaten umschleusen, ohne daß sie wärmer als 12 K wurden.

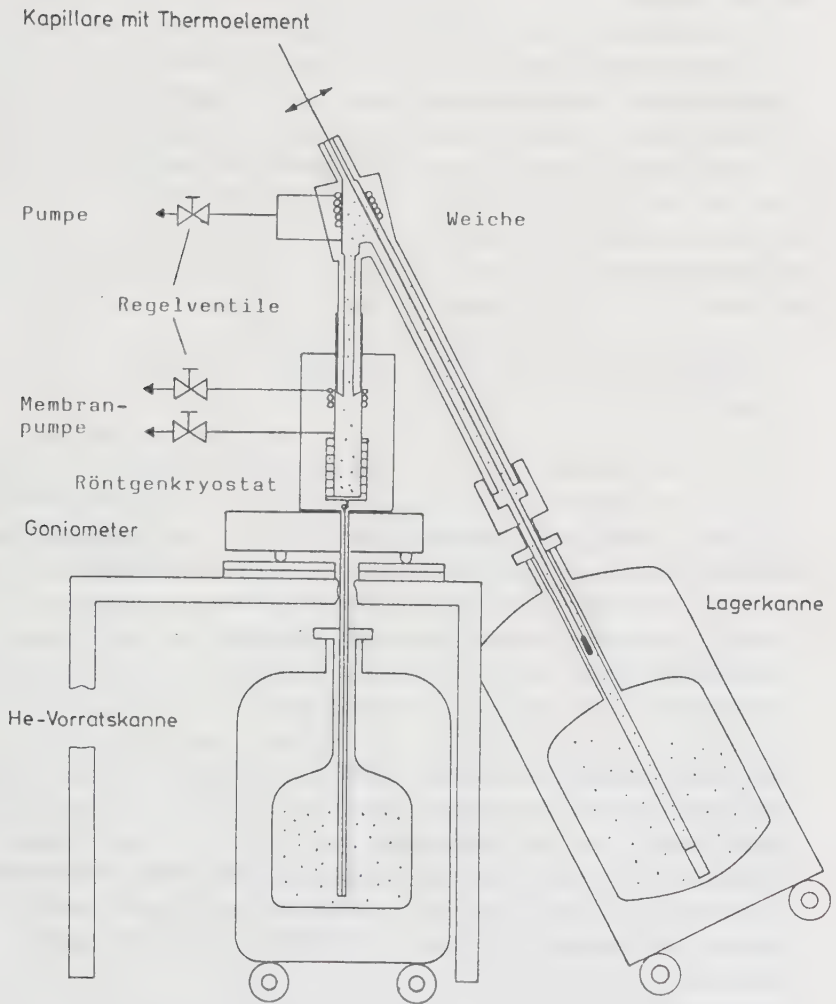


Abb.III.10 Umschleusen der bestrahlten Proben in den Meßkryostaten.

III.7. PROBEN

Aus zylindrischen Einkristallen wurden folgende Proben mit verschiedenen Orientierungen präpariert (Tabelle III.4):

Kristall	Oberfläche	Querrichtungen
Al (300ppm Ag)	(110)	110 , 001
Al (1000ppm Zn)	(110)	110 , 001
Al rein	(111)	$\bar{2}11$
Cu rein	(111)	$\bar{2}11$

Tabelle III.4 Probenorientierung

Um aus der Huangstreuung die quadratischen Komponenten des Doppelkrafttensors vollständig bestimmen zu können, wurden aus den Aluminiumlegierungen jeweils zwei (110)-orientierte Kristalle mit den geeigneten Querrichtungen geschnitten. Am reinen Aluminium und Kupfer wurde die (111)-Oberfläche gewählt, um die Bildung von Versetzungsringen studieren zu können, die in fcc-Metallen bevorzugt in (111)-Gitterebenen kondensieren.

Mit Laueaufnahmen wurde die Orientierung der Zylinder ermittelt und dann die gewünschte Fläche mit Funkenerosion geschnitten. Die Feinjustierung erfolgte auf dem Röntgendiffraktometer durch Drehen der Proben um die Oberflächennormale. Nach dem anschließenden Funkenplanerodieren waren die geglätteten Meßoberflächen um weniger als 0.3° gegen die Netzebene verkippt.

Anschließend wurden die Kristalloberflächen mit einer Jet-Polieranlage (Marke Struers) elektropoliert. Für Aluminium wurde als Elektrolyt eine Zusammensetzung von 200 ml Magnesiumperchlorat mit 800 ml Methanol verwendet (Mohr 1979). Der

Elektrolyt für Kupfer bestand zu 30% aus Salpetersäure und zu 70% aus Methanol (v. Guerard 1974). Durch Elektropolieren wurden etwa 0.1-0.2 mm abgetragen. Um gute Oberflächen zu erhalten, war dabei wichtig, daß möglichst nur der Kristall mit dem Elektrolyt in Berührung kam. Andere Teile konnten z.B. mit Uhu hart abgedeckt werden. Mit Funkenerosion wurden dann ca. 1-2 mm dicke Scheiben abgesägt und daraus die rechteckigen Proben mit den in Tabelle III.4 angegebenen Querrichtungen geschnitten. Anschließend wurden die Kupferkristalle zur Säuberung kurz in Salpetersäure geätzt und in Aceton gebadet. Dann wurden sie bei 800° C unter 1.8 bar Argon Schutzgas drei Stunden getempert und langsam abgekühlt. Die Drahtproben für die elektrische Widerstandsmessung wurden der gleichen Prozedur unterzogen.

Der Kupfereinkristall war von sehr guter Kristallqualität mit einer Reinheit von 99.999 % (F.W. Young, Oak Ridge National Lab), ebenso der reine Aluminiumkristall mit einem Restwiderstandsverhältnis > 30000 (Vereinigte Aluminium Werke). Der Bezug von guten Aluminiumeinkristallen mit einer bestimmten Fremdatomkonzentration erwies sich jedoch als schwierig. Deshalb mußten hier einige Abstriche bei den Qualitätsansprüchen in Kauf genommen werden. Die in Tabelle III.4 angegebene Fremdatomkonzentration der Al(Zn)-Kristalle (Firma IBS) und der Al(Ag)-Kristalle (Prof. M.L. Swanson) wurde mit Neutronenaktivierung an den Einkristallresten bestimmt. Der Anteil sonstiger Verunreinigungen lag unter 10 ppm. Um zu kontrollieren, ob die Fremdatome homogen in den verdünnten Legierungen verteilt sind und nicht agglomerieren, wurde ihr elektrischer Restwiderstand gemessen. Dazu wurden Einkristallreste zu Folien gewalzt und daraus Widerstandsproben hergestellt, die der gleichen Behandlung wie die Einkristalle unterzogen wurden. Die Fremdatomkonzentrationen, die aus den bekannten Widerstandsbeiträgen der einzelnen Atomsorten (Fickett 1971) ermittelt wurden, stimmten bis auf 10% mit den Werten aus den Aktivierungsanalysen überein.

IV. ERGEBNISSE NACH BESTRAHLUNG

Bei allen Bestrahlungen wurde als Referenz immer die Änderung des elektrischen Restwiderstandes eines reinen Aluminiumdrahtes in der Bestrahlungskapillare aufgezeichnet (Abb.IV.1). Der Fluß schneller Neutronen wurde mit der bei Böning (1967) beschriebenen Apparatur zur kontinuierlichen Messung des Neutronenflusses über die Aktivität von N^{16} gemessen, das durch die Kernreaktion $O^{16} (n,p) N^{16}$ gebildet wird. Auf Grund des Flußgradienten in der Bestrahlungsposition zeigten die Widerstandsdrähte hinter den Einkristallproben eine um etwa 10% größere Widerstandserhöhung als die Drähte in der Kapillare.

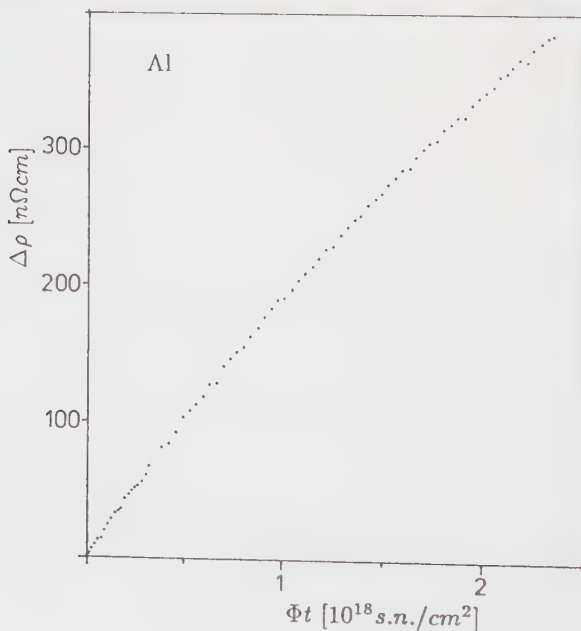


Abb.IV.1 Dosiskurve der elektrischen Restwiderstandsänderung von Al bei Tieftemperatur-Neutronenbestrahlung.

IV.1. REINES AL UND AL-LEGIERUNGEN

In den Abbildungen IV.2 bis IV.5 sind typische Streuverteilungen nach Bestrahlung und völliger Ausheilung bei 500 K an verschiedenen Reflexen in unterschiedlichen Richtungen des reziproken Raumes gezeigt. Die Aluminiumlegierungen waren mit einer niedrigen Dosis von $0.6 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ bestrahlt, um das Überlappen von Defektkaskaden möglichst zu vermeiden. Die Al(Ag)-Proben wurden mit Mo- $K\alpha_1$ -Strahlung am (440)-Reflex in den hochsymmetrischen Richtungen $[110]$, $[1\bar{1}0]$ und $[001]$ gemessen. Die Messungen am Al(Zn)-Kristall wurden am (440)-Reflex in $[110]$ und $[001]$ -Richtung mit Mo- $K\alpha_1$ -Strahlung durchgeführt und am (220)-Reflex in $[110]$ und $[1\bar{1}0]$ -Richtung mit Cu- $K\alpha_1$ -Strahlung. Aus diesen Messungen können die quadratischen Komponenten des Doppelkrafttensors bestimmt und damit auf die Stärke und Symmetrie der Defekte geschlossen werden (s. Gl.II.19).

In $[1\bar{1}0]$ -Richtung konnte nur sehr geringe diffuse Streuung festgestellt werden (Abb.IV.2). Dies bedeutet, daß die Defekte keine oder nur schwache Tetragonalität besitzen ($(\alpha-\beta)=0$). Die Messung in $[001]$ -Richtung ($I_H \sim \gamma/c_{44}^2$) reagiert wegen der geringen Größe der elastischen Konstante c_{44} empfindlich auf Scheranteile des Verzerrungsfeldes. Die diffuse Intensität in dieser Richtung zeigt, daß nach Bestrahlung auch Defekte mit trigonaler Symmetrie vorhanden sind (Abb.IV.3). In allen Fällen überwiegt jedoch die diffuse Intensität in radialer Richtung. Die erhöhte diffuse Streuung für positive $\Delta 2\theta$ zeigt, daß aufweitende Defekte, also Zwischengitteratome, die Gitterverzerrungen dominieren (s. S. 21). Da in Aluminium das Relaxationsvolumen des Einzel-ZGA ($\Delta V_{ZGA} = 1.9 V_a$) etwa 20 mal so groß wie das der Einzel-LS ($\Delta V_{LS} = -0.05 V_a$) ist (Ehrhart 1985), kann der Streubeitrag der Leerstelle in der Umgebung der Braggreflexe vernachlässigt werden.

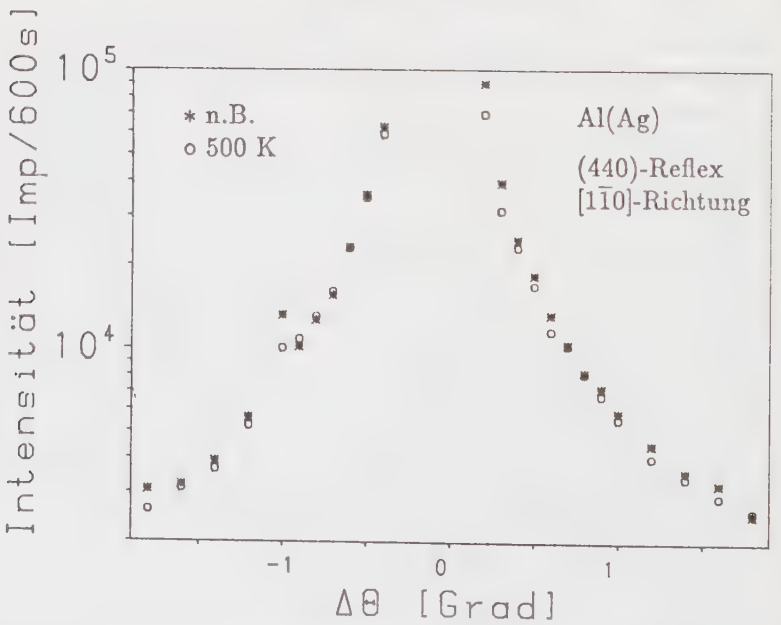
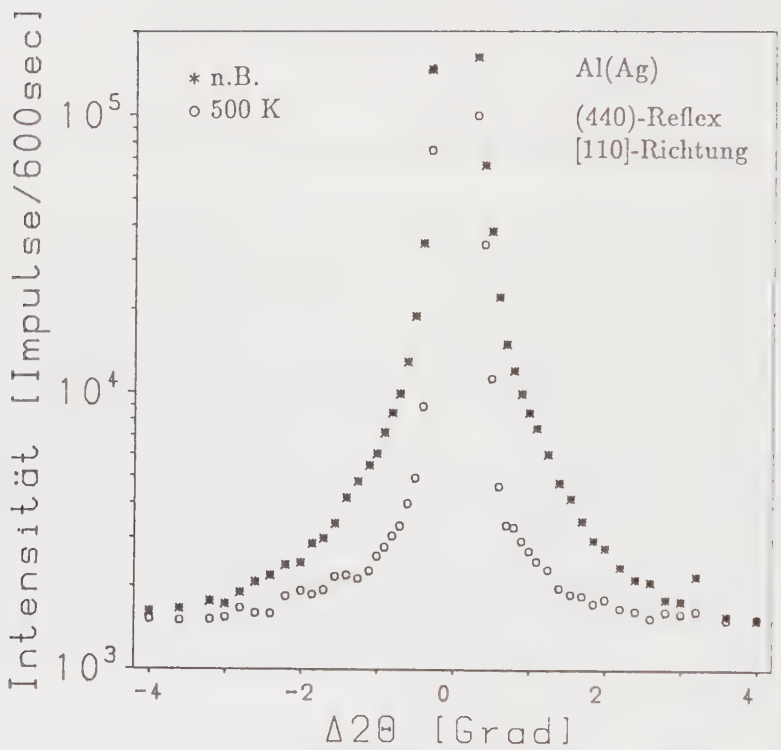


Abb.IV.2 Gestreute Intensität am (440)-Reflex von Al(Ag) nach Bestrahlung (*) und vollständiger thermischer Erholung (o).

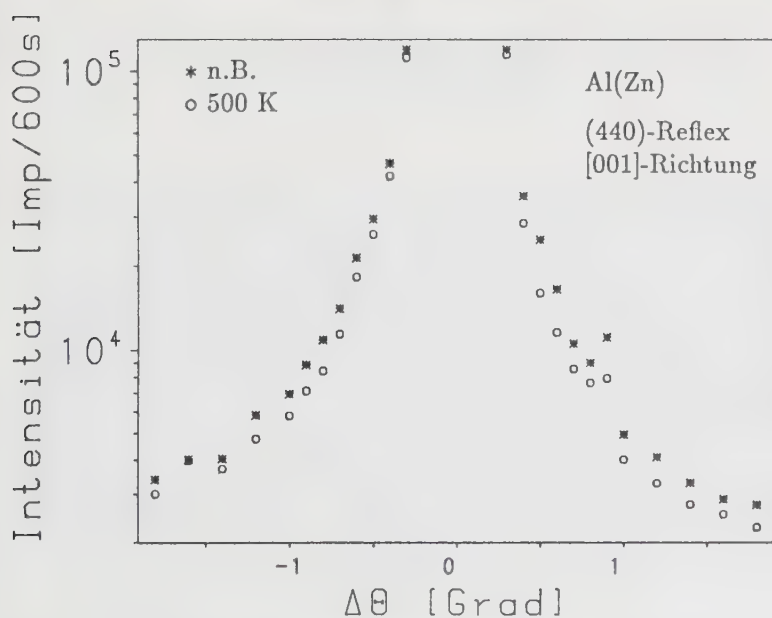
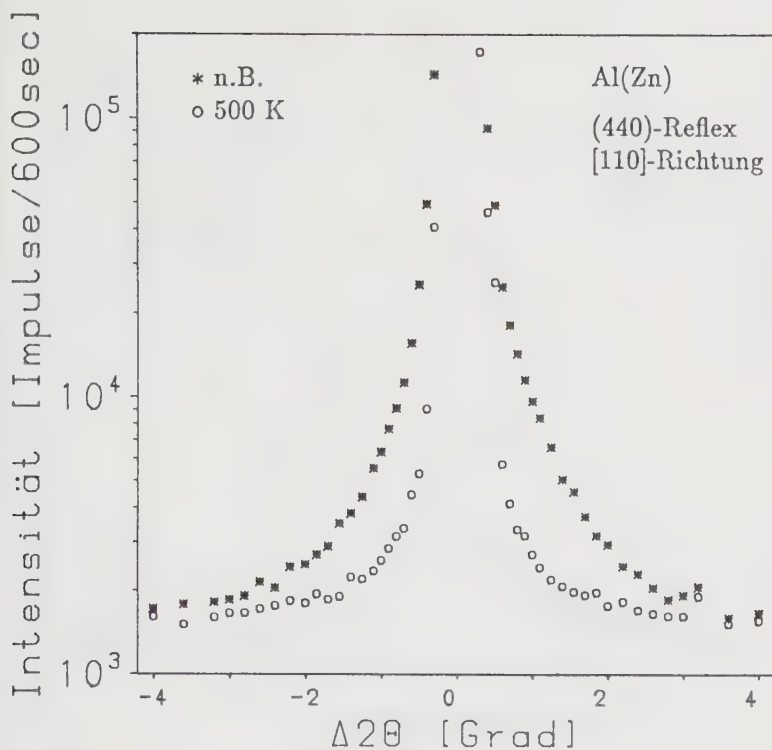


Abb.IV.3 Gestreute Intensität am (440)-Reflex von Al(Zn) nach Bestrahlung (*) und vollständiger thermischer Erholung (o).

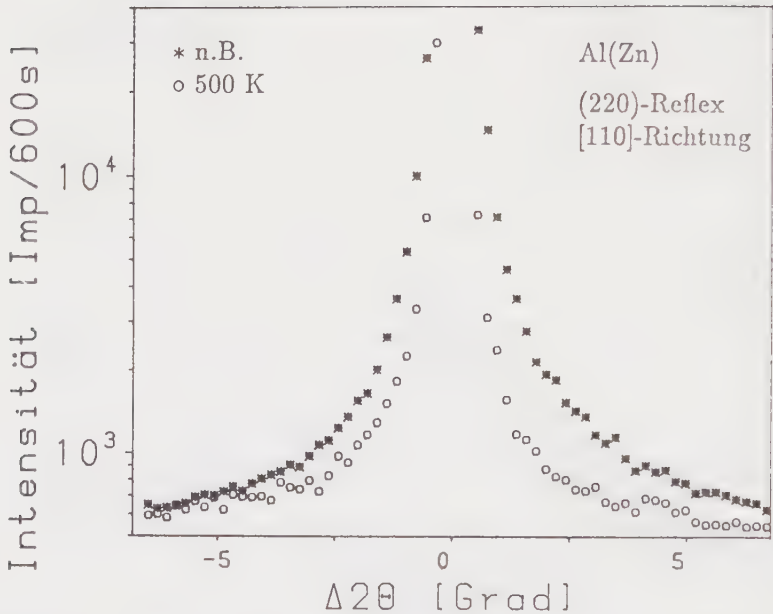


Abb.IV.4 Gestreute Intensität am (220)-Reflex von Al(Zn) nach Bestrahlung (*) und vollständiger thermischer Erholung (o).

Am reinen Al-Kristall wollten wir vor allem die Bildung von Versetzungsloops bei thermischer Erholung studieren. Da diese Defekte in fcc-Metallen bevorzugt in (111)-Ebenen liegen, war der Kristall in dieser Richtung orientiert. Wegen der zu erwartenden kleinen Meßeffekte wurde die Bestrahlungsdosis auf $2.4 \cdot 10^{18}$ n/cm² erhöht. Eine Messung an diesem Kristall, am (222)-Reflex in [111]-Richtung mit Kupfer-K α_1 -Strahlung, ist in Abbildung IV.5 zu sehen.

Wie im theoretischen Kapitel bereits besprochen wurde, ist die Streuerverteilung bei verschiedenen großen Abständen vom reziproken Gittervektor für bestimmte, unterschiedliche

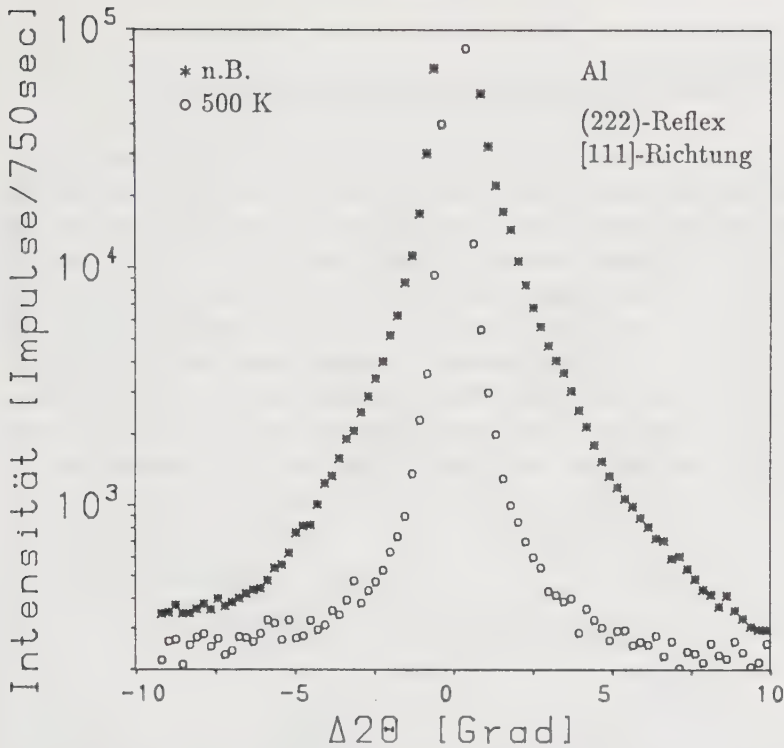


Abb.IV.5 Gestreute Intensität am (222)-Reflex von Al nach Bestrahlung (*) und vollständiger thermischer Erholung (o).

Defekteigenschaften empfindlich. Bei kleinen q -Werten liefert die Huangstreuung Informationen über Stärke und Symmetrie der langreichweitigen Verschiebungsfelder. Bei größeren q -Werten reagiert die asymptotische Streuung empfindlich auf die stark verzerrte nähere Umgebung der Defekte. Die räumliche Korrelation der Defekte in Kaskaden sollte sich dagegen bei kleinsten q -Werten, sehr nahe am Reflex, bemerkbar machen. Dieser Bereich wurde mit höherer Auflösung untersucht und wird in Abschnitt IV.1.3., im Anschluß an die beiden ersten Punkte, besprochen.

IV.1.1. AGGLOMERATION UND SYMMETRIE DER DEFEKTE

Die diffus gestreute Intensität erhalten wir aus der Differenz der Messungen nach Bestrahlung und völliger Ausheilung nach Tempern auf 500 K. Zur Auswertung der Huangintensität wird die Streuverteilung symmetrisiert, d.h. es wird das Mittel aus positivem und negativem q -Bereich gebildet ($I_{\text{sym}} = 1/2 (I(+q) + I(-q))$). In den Abbildungen IV.6 und IV.7 sind die symmetrisierten Intensitäten für die Al(Ag)- und Al(Zn)-Kristalle in verschiedenen q -Richtungen aufgetragen. Zum Vergleich ist die Huangstreuung in $[110]$ -Richtung für die gleiche Defektkonzentration nach Elektronenbestrahlung eingezeichnet. Dort werden die Zwischengitteratome vor-

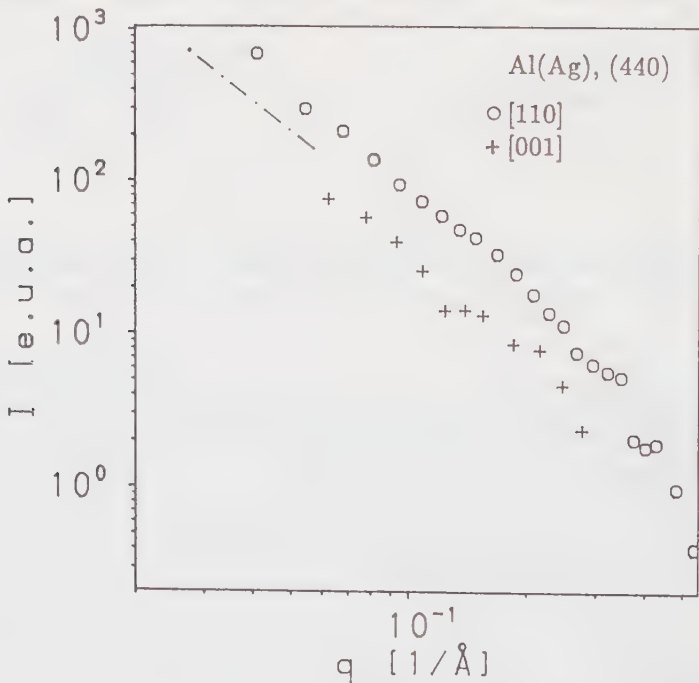


Abb.IV.6 Diffuse Streuung am (440)-Reflex von Al(Ag) nach Bestrahlung (o in $[110]$ -Richtung, + in $[001]$ -Richtung). (--- Huangstreuung von Einzeldefekten in $[110]$ -Richtung).

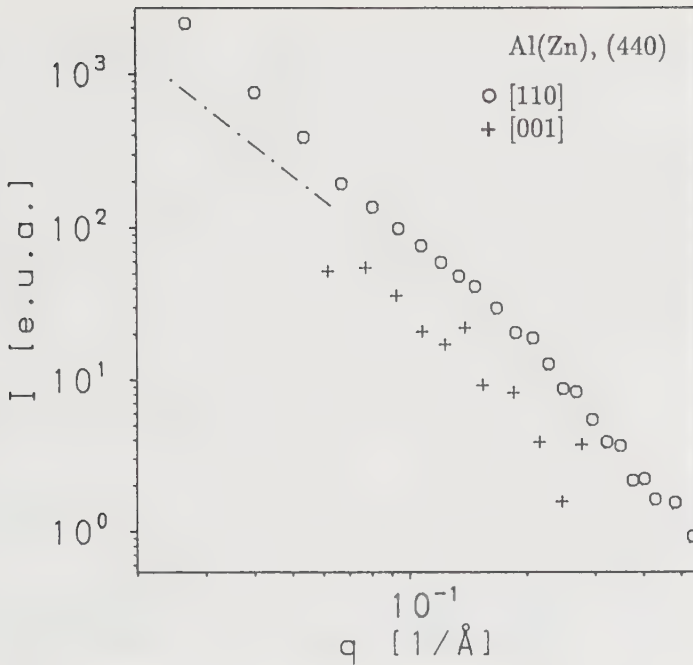


Abb.IV.7 Diffuse Streuung am (440)-Reflex von Al(Zn) nach Bestrahlung (○ in [110]-Richtung, + in [001]-Richtung). (--- Huangstreuung von Einzeldefekten in [110]-Richtung).

wiegend als zufällig verteilte Einzeldefekte erzeugt, die in Form von [100]-Hanteln mit fast kubischem Doppelkrafttensor ($\text{Sp}(P) = 47 \text{ eV}$) vorliegen (Ehrhart 1973).

Die Defektkonzentration wurde dabei aus der Änderung des Gitterparameters $\Delta a/a = c/3 (\Delta V_{ZGA} + \Delta V_{LS})$ bzw. des elektrischen Restwiderstandes $\Delta \rho = c \rho_F$ ermittelt. Für die Relaxationsvolumina von Zwischengitteratom und Leerstelle wurden $+1.9 V_a$ und $-0.05 V_a$ eingesetzt. Für den Widerstandsbeitrag des Frenkeldefektes wurde ein Wert von $0.4 \text{ n}\Omega\text{cm/ppm}$ verwendet (Ehrhart 1985). Die Meßergebnisse sind in Tabelle IV.1 zusammengefaßt.

Probe	$\underline{G}$	$\Delta\rho_K$ [nΩcm]	$\Delta\rho_{Pr}$ [nΩcm]	$\Delta a/a$ 10^{-6}	I_H/I_{H1}	$I_{H,a}/I_{H,r}$
Al (Ag) [110]	440	119±1		216±8	1.2 ± 0.2	0.0 ± 0.1
Al (Ag) [001]	440	119±1	135±1	223±8	1.7 ± 0.3	0.3 ± 0.1
Al (Zn) [110]	220	122±1	140±1		1.1 ± 0.2	0.0 ± 0.1
Al (Zn) [001]	440	122±1	140±1	233±8	1.6 ± 0.3	0.25± 0.1

Bestrahlungsdosis: $\Phi t = 0.6 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$

$\Delta\rho_K$ Änderung des elektrischen Restwiderstandes des Al-Drahts in der Bestrahlungskapillare ($\Delta\rho_{Pr}$ = Probe)

I_H/I_{H1} Huangintensität normiert auf die Streuung von Einzeldefekten

$I_{H,a}/I_{H,r}$ Verhältnis von angularer zu radialer Huangintensität

Tabelle IV.1 Huangstreuung, Änderung des Gitterparameters und des elektrischen Restwiderstandes nach Bestrahlung.

Der Fehler in der Spalte I_H/I_{H1} resultiert hauptsächlich aus der Unsicherheit in der Absoluteichung der Intensität mit dem Eichstreuer (s. S. 39). Für die Bestimmung der Defektsymmetrie kann dieser Fehler vermieden werden, indem man das Verhältnis von $I_{H,ang}$ und $I_{H,rad}$ für jeden Kristall gesondert bildet.

Die Ergebnisse der Auswertung sind in Tabelle IV.2 aufgezeigt und werden mit elektronen- und neutronenbestrahltem reinem Al sowie einer elektronenbestrahlten Al(Ag)-Legierung verglichen. Die beiden letzten Spalten geben die Abweichung von der kubischen Defektsymmetrie an (s. Gl. II.19). Die tetragonale Komponente ($\alpha - \beta$) und die Scheranteile γ des Doppelkrafttensors P sind auf die Defektstärke $(\alpha + 2\beta) = (Sp(P))^2$ normiert. Der Beitrag der Leerstellen zur Huangstreuung ist kleiner als 1% und wird im folgenden vernachlässigt.

Probe	c [ppm]	$\langle n \rangle$	$\frac{\alpha - \beta}{\alpha + 2\beta}$	$\frac{\gamma}{\alpha + 2\beta}$
Al(Ag)	350 ± 20	1.5 ± 0.2	0.0 ± 0.005	0.007 ± 0.002
Al(Zn)	360 ± 20	1.4 ± 0.2	0.0 ± 0.005	0.006 ± 0.002
Al (1)	600-1000	3	0.007 ± 0.002	0.10 ± 0.002
Al, e ⁻ (2)	300	1	0.003 ± 0.003	0. ± 0.0004
Al(Ag), e ⁻	70 ± 15	1.0 ± 0.2	(3) 0 ± 0.008	0. ± 0.003

(1) Grasse (1980), (2) Ehrhart (1973), (3) Rauch (1982)

Tabelle IV.2 Agglomeration und Symmetrie der Defekte.

Die elektronenbestrahlten Al(Ag)-Proben enthielten 900 ppm Ag. Sie wurden oberhalb Stufe I, bei 90 K, mit Elektronen der Energie 2 MeV am Hahn-Meitner Institut für Kernforschung in Berlin bestrahlt. Die Bestrahlungsapparatur ist bei Bolze (1985) beschrieben. Die erzeugten ZGA sind bei der Bestrahlungstemperatur von 90 K beweglich und werden an den Ag-Atomen eingefangen. Da für diese Proben die FA-Konzentration mehr als 10 mal so groß wie die der ZGA war, wurde überwiegend nur ein ZGA am Ag eingefangen, wie $\langle n \rangle = 1$ zeigt. Die so gebildeten FA-ZGA-Komplexe zeigen kubische Symmetrie und ihr Doppelkrafttensor stimmt im Rahmen der Meßgenauigkeit mit dem von [100]-Eigen-ZGA-Hanteln in reinem Al (Ehrhart 1973) überein. Channeling-Messungen deuten auf gemischte [100]-Hanteln als bevorzugte Defektkonfiguration in Al(Ag) und Al(Zn) hin (Swanson 1979, 1975). Ähnliche Ergebnisse liefern Ultraschalllexperimente an Al(Zn) nach Elektronenbestrahlung (Granato 1982). EXAFS-Messungen von Bolze (1985) favorisieren das ZGA auf einem Oktaederplatz neben dem Zn-Atom und Eigen-ZGA-Hanteln, die in der Nähe der FA eingefangen sein sollen. Diese Defektkonfigurationen zeigen alle eine kubische oder schwach tetragonale Symmetrie des Verschiebungsfeldes und sind mit dem gemessenen Doppelkrafttensor am elektronenbe-

strahlten Al(Ag) verträglich. Defektkonfigurationen mit grossen Scheranteilen wie die gemischte [111]-Hantel, die von Weber (1983) auf Grund von EXAFS-Messungen an Al(Ag) für die wahrscheinlichste gehalten wird, können jedoch ausgeschlossen werden.

Im Vergleich zu den elektronenbestrahlten Proben ist die diffuse Intensität der neutronenbestrahlten Legierungen in radialer Richtung ungefähr um das Eineinhalbfache erhöht. Da der Doppelkrafttensor der FA-ZGA-Komplexe, wie im vorhergehenden gezeigt wurde, nicht von dem der Eigen-ZGA zu unterscheiden ist, muß dies auf die Agglomeration von ZGA zurückgeführt werden. Aus der Überhöhung der Huangstreuung, im Vergleich zur Streuung von zufällig verteilten Einzeldefekten, ergibt sich ein mittlerer Agglomerationsgrad $\langle n \rangle$ der ZGA von etwa 1.5. Diese Agglomeration führt zu einer kleinen Änderung der Defektsymmetrie, wie das Auftreten des Scheranteils zeigt ($\gamma \neq 0$).

Im Vergleich zu reinem, mit Neutronen bestrahltem Aluminium (Grasse 1980) ist jedoch der Agglomerationsgrad auf die Hälfte reduziert. Ebenso ist die Abweichung von der kubischen Symmetrie in den Legierungen geringer. Mögliche Modelle, die dieses Verhalten erklären können, werden später diskutiert.

IV.1.2. NAHFELD DER DEFEKTE

Aus der Huangstreuung lassen sich wichtige Defekteigenschaften ermitteln, die das langreichweitige Verschiebungsfeld bestimmen. Aus der asymptotischen Streuung können Informationen über das Defekt-Nahfeld gewonnen werden. Der q -Wert, bei dem der Übergang von der Huangstreuung zur asymptotischen Streuung auftritt, ist empfindlich auf die Defektstärke und von der Absoluteichung unabhängig. Je größer die Agglomerate

sind, um so mehr trägt die stark verzerrte Umgebung der Defekte zur diffusen Streuung bei. Die Bedingung für die Huangnäherung $Ku(r) < 1$ verliert wegen der starken Verschiebungen bereits für größere Abstände r_{cl} vom Defekt ihre Gültigkeit, und der Übergang zur asymptotischen Streuung erfolgt bei kleineren q -Werten (s. S. 16).

Ein mittlerer Agglomerationsgrad von 1.5 bedeutet, daß mindestens 50% der Zwischengitteratome als Einzeldefekte vorliegen müssen. Entsprechend wurde der Streuverlauf für [100]-Hanteln numerisch berechnet und der gemessenen Intensität angepaßt. In den Abbildungen IV.8. und IV.9. sind die Ergebnisse für Al(Ag) und Al(Zn) gezeigt. Die gemessene Streuverteilung wird über einen großen q -Bereich richtig von den theoretischen Kurven wiedergegeben. Erst für höhere q -Werte scheinen die Meßpunkte etwas rascher als die Einzeldefektintensität abzunehmen, was mit der leichten Agglomeration der Zwischengitteratome erklärt werden kann. Am (220)-Reflex erfolgt die Abweichung von der Huangstreuung, wegen der Bedingung $Ku < 1$, bei größeren Abständen vom reziproken Gittervektor als am (440)-Reflex.

Daß der Übergang zur asymptotischen Streuung mit zunehmender Agglomeration bei kleineren q -Werten erfolgt, zeigt ein Vergleich mit reinem, neutronenbestrahltem Aluminium in Abbildung IV.10. Aus der Huangstreuung ergab sich für diese Probe der Agglomerationsgrad 2.5. Obwohl sie mit einer höheren Neutronendosis ($2.4 \cdot 10^{18}$ n/cm²) als die Legierungen bestrahlt wurde, kann sie dennoch mit diesen verglichen werden, da in reinem Aluminium der Agglomerationsgrad in einem Dosisbereich von $0.6 \cdot 10^{18}$ bis $2.4 \cdot 10^{18}$ n/cm² relativ konstant sein soll (Grasse 1980). Aus dem q -Wert, bei dem der Übergang von Steigung -2 zu Steigung -4 auftritt, kann man mit der Beziehung $q_{cl} \approx 1/r_{cl}$ (s. S. 16) näherungsweise auf die Stärke des Nahfeldes und damit auf die Höhe der Agglomeration schließen.

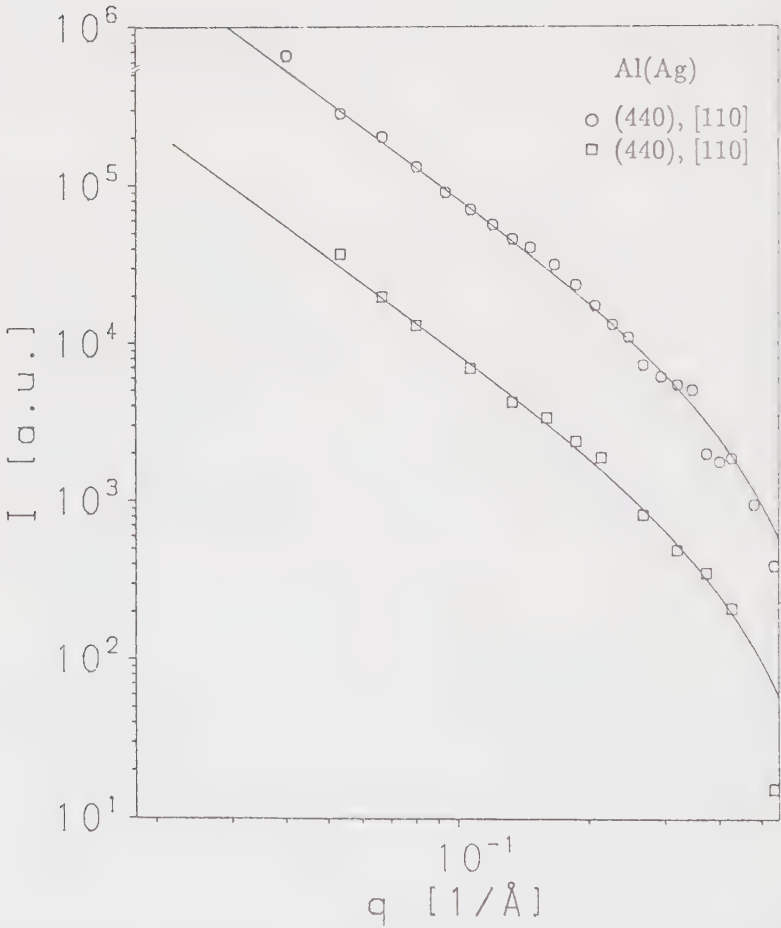


Abb.IV.8 Diffuse Streuung von zwei Al(Ag)-Kristallen am (440)-Reflex in [110]-Richtung (□,○) (○ Intensität mit 10 multipliziert). (— numerisch berechnete Streukurve für [100]-Hanteln, der gemessenen Streuverteilung angepaßt).

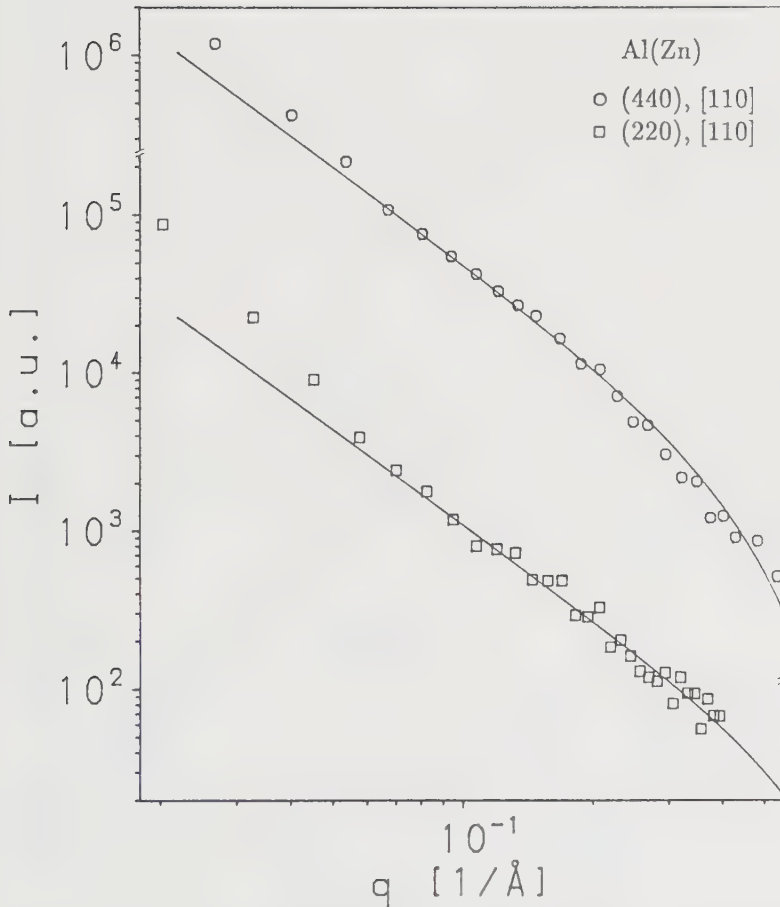


Abb.IV.9 Diffuse Streuung von zwei Al(Zn)-Kristallen am (440) und (220)-Reflex in [110]-Richtung (□,○) (○ Intensität mit 10 multipliziert). (— numerisch berechnete Streukurven für [100]-Hanteln, den gemessenen Streuverteilungen angepaßt).

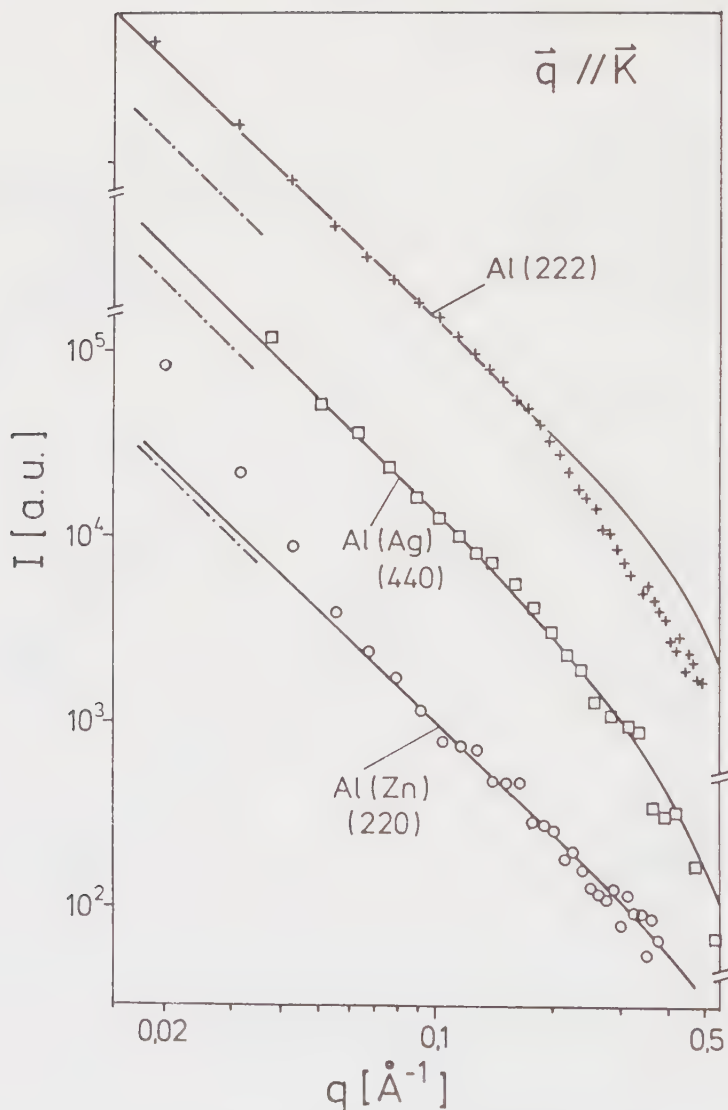


Abb.IV.10 Diffuse Streuung von Al(Ag), Al(Zn) und reinem Al.
 — numerisch berechnete Streukurven für $[100]$ -Hanteln,
 den gemessenen Streuverteilungen angepaßt.
 - · - · - Huangstreuung von Einzeldefekten.

Der Radius der stark verzerrten Gebiete ist durch $Ku(r_{c1}) = 1$ gegeben und hängt damit vom Streuvektor K ab. Je größer K wird, desto früher erfolgt der Übergang zur asymptotischen Streuung. Dies ist deutlich in Abbildung IV.10 an den für [100]-Hanteln numerisch in der Umgebung verschiedener Bragg-reflexe berechneten Streukurven zu sehen. Ersetzt man die Defektstärke der Agglomerate durch ein mittleres Relaxationsvolumen $\langle V_{c1} \rangle = \langle n \rangle V_{ZGA}$ und beschreibt ihre Verschiebungsfelder nach Gleichung II.7 in isotroper Näherung, so erhält man aus q_{c1} als Abschätzung für den mittleren Agglomerationsgrad

$$\langle n \rangle = \frac{4\pi}{\eta \Delta V_D} \frac{1}{K q_{c1}^2} \quad (\text{IV.1})$$

Mit $\eta = 0.686$ (Leibfried 1978) und $\Delta V_{ZGA} = 1.9 V_a$ (Ehrhart 1985) ergibt sich aus Abb.IV.10 mit $q_{c1} \approx 0.22 \text{ \AA}^{-1}$ ein $\langle n \rangle$ von 2.3. Dieses Ergebnis stimmt gut mit dem mittleren Agglomerationsgrad $\langle n \rangle = 2.5$ überein, der aus der Huangstreuung ermittelt wurde.

IV.1.3. KASKADENKORRELATION DER DEFECTE

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, daß die Zwischen-gitteratome bereits direkt nach Neutronenbestrahlung agglomerieren und, daß diese Agglomeration durch Fremdatome behindert wird. Um diese Effekte zu verstehen, muß man ein möglichst gutes Bild von der Struktur der Defektkaskaden in Aluminium gewinnen. Dazu muß die Korrelationsfunktion genau gemessen und die Energieverteilung der primär angestoßenen Atome berücksichtigt werden.

IV.1.3.1. KORRELATIONSFUNKTION

Bei sehr kleinen q -Werten nimmt die Huangstreuung stärker zu als man es für zufällig verteilte Einzeldefekte erwartet. Dies ist besonders deutlich an der Messung mit höherer Auflösung, am (220)-Reflex von Al(Zn) in Abbildung IV.10, zu sehen. Dieser zusätzliche Anstieg wird als Korrelation in der räumlichen Verteilung der Defekte interpretiert. Zur genaueren Untersuchung dieses Effektes multipliziert man die diffuse Intensität mit q^2 , um den q^{-2} -Abfall der Huangstreuung auszugleichen. Die Ergebnisse am Al(Ag) und Al(Zn) sind in den Abbildungen IV.11 und IV.12 dargestellt. Die Messungen am Al(Ag) werden nahe am Reflex wegen der schlechteren Kristallqualität von der breiteren Rockingkurve beeinflusst und waren deshalb weniger gut. An einigen Stellen sind die auflösungskorrigierten Werte eingezeichnet (volle Symbole). Besonders bei den Messungen mit Mo-K α_1 -Strahlung an den (440)-Reflexen spielen diese Korrekturen eine große Rolle (s. Abschnitt III.4.). Der Beginn des Anstiegs wird jedoch von den Auflösungseffekten nur wenig beeinflusst. Ein Vergleich der Korrelationsfunktion bei gleicher Bestrahlungsdosis von reinem Aluminium (Grasse 1980) mit derjenigen der Aluminiumlegierungen zeigt, zumindest in diesem Bereich, keine meßbaren Unterschiede (Abb.IV.13).

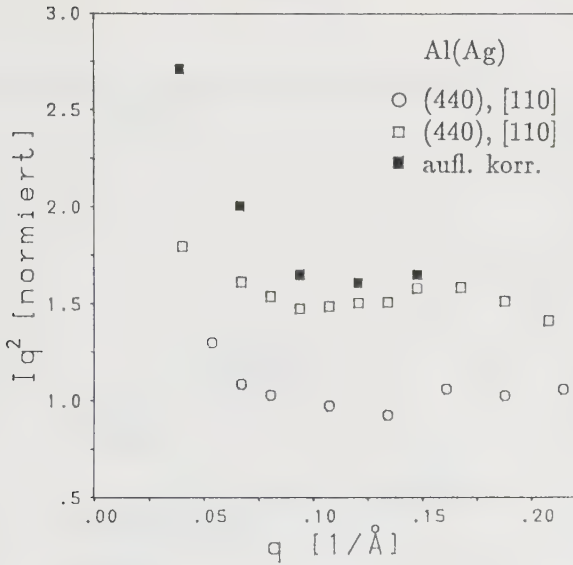


Abb.IV.11 Diffuse Intensität multipliziert mit q^2 am (440)-Reflex von Al(Ag), normiert auf 1 bei großen q -Werten. (volle Symbole = auflösungskorrigierte Werte) ($\square Iq^2 + 0.5$).

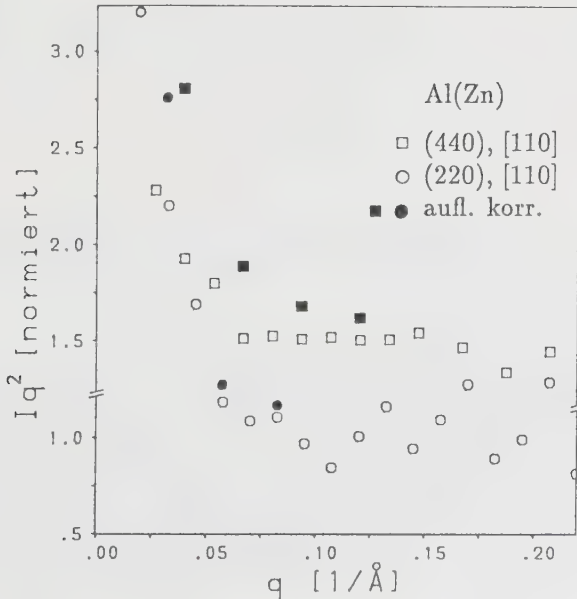


Abb.IV.12 Diffuse Intensität multipliziert mit q^2 am (440) und (220)-Reflex von Al(Zn), normiert auf 1 bei großen q -Werten. (volle Symbole = auflösungskorrigierte Werte) ($\square Iq^2$

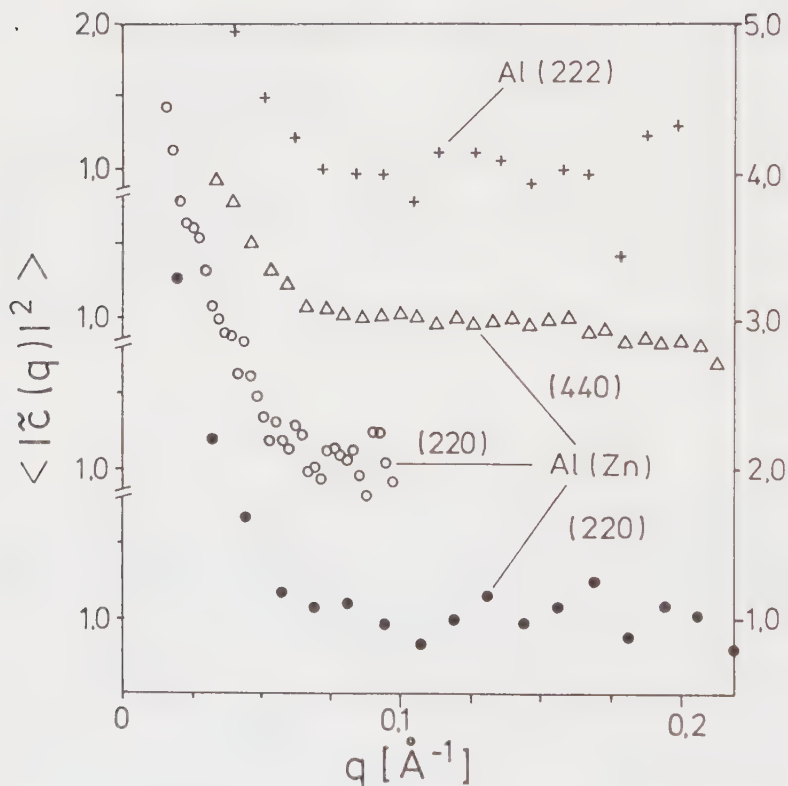


Abb.IV.13 $|\tilde{c}(q)|^2$ gemessen an verschiedenen Braggreflexen von Al(Zn) (o, ●, Δ), verglichen mit reinem Al(+) (Grasse 1980).

Am (220)-Reflex von Al(Zn) wurde die Korrelationsfunktion mit höherer radialer Auflösung untersucht (o in Abb.IV.13). Damit konnte der kritische Bereich nahe am Braggreflex besser gemessen werden. Anhand dieser Messung wird im folgenden Abschnitt die Kaskadenkorrelation der Defekte genauer untersucht.

IV.1.3.2. GRÖSSENVERTEILUNG DER KASKADEN

Die Korrelationsfunktion wird sowohl von der räumlichen Ausdehnung der Kaskaden - genau genommen, wenn man die Streuung der LS vernachlässigt, von der des ZGA-Bereichs- als auch von der Anzahl der Defekte innerhalb der Kaskaden bestimmt (s. Gl. II.36). Beide Größen hängen von der Energie T des PKA ab, das die Kaskade erzeugt. Das Energiespektrum der Neutronen in der TTB-Position reicht vom meV-Bereich der thermischen Neutronen bis zu einigen MeV der Spaltneutronen (Mansel 1982). Entsprechend breit gestreut ist die Energieverteilung der PKA, die von den Neutronen erzeugt werden. Für eine quantitative Interpretation der Messungen muß deshalb das ganze Rückstoßspektrum der primär angestoßenen Atome berücksichtigt werden. In Abbildung IV.14 ist der Bruchteil der PKA mit Energien $< T$ für die Elemente Cu und Al gezeigt, wie er aus dem Neutronenspektrum der TTB und den Wirkungsquerschnitten errechnet wurde (Wallner 1987). Insbesondere für die leichten Elemente überwiegt der Energieübertrag durch elastische Stöße. Deshalb ist besonders der Fluß schneller Neutronen ($E > 0.1\text{MeV}$) für die Defekterzeugung von Bedeutung.

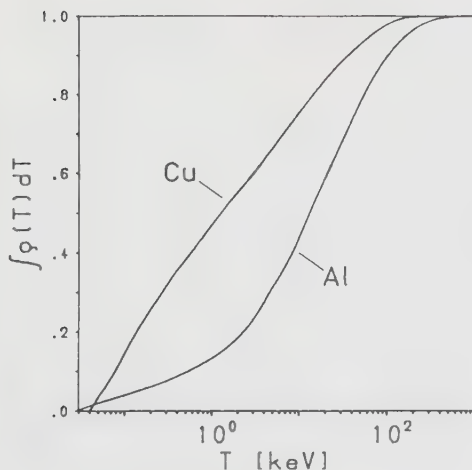


Abb.IV.14 Bruchteil der PKA mit Energien $< T$ für Cu und Al (Wallner 1987). (Es sind nur PKA mit $T > E_d$ berücksichtigt).

Die gesuchten Größen, die Anzahl der Defekte pro Kaskade $n(T)$ und der Kaskadenradius $R(T)$, lassen sich jedoch nicht ohne weiteres direkt aus der experimentellen Streuverteilung ermitteln. Man benötigt vielmehr gewisse Modellvorstellungen, um Aussagen über die Struktur der Kaskaden machen zu können. Gestützt auf diese Modellannahmen wurden theoretische Streuverteilungen berechnet und diese mit der experimentellen verglichen. Ein Schema der Berechnungen ist in Abbildung IV.15 skizziert. Aus vernünftigen Startwerten für die Funktionen $n(T)$ und $R(T)$ wird $\tilde{c}(q)$ der i -ten Kaskade nach Gleichung II.36 und II.37 berechnet und mit der Häufigkeit der Kaskade im Rückstoßspektrum gewichtet. Den Beitrag aller Kaskaden zur diffus gestreuten Intensität erhält man durch Summation über das ganze Rückstoßspektrum. Falls die so berechnete theoretische Streuverteilung nicht mit der experimentellen übereinstimmt, werden die Größen $n(T)$ und $R(T)$ entsprechend geändert und die Rechnung wiederholt.

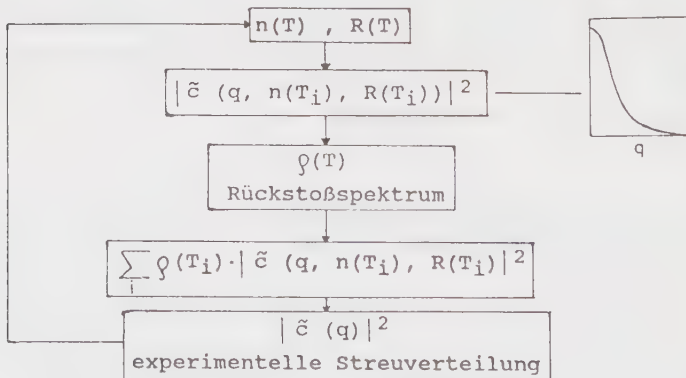


Abb.IV.15 Schema der Modellrechnungen zur Bestimmung der Größenverteilung der Kaskaden.

Die Grundlage für die Berechnung der Anzahl der erzeugten Defekte pro Kaskade bildete das modifizierte Kinchin-Pease-Modell nach Gleichung (II.1). Inelastische Verluste wurden nach einem Lindhard-Modell (Lindhard 1963) mitberücksichtigt und führen vor allem bei höheren Energien zu Abweichungen von der linearen Defektzunahme. Für die Schädigungsenergie wurde dabei verwendet:

$$T_{Sch} = \frac{T}{1 + 0.0876 Z^{1/6} g(\tau)} \quad (\text{IV.2})$$

mit
$$\tau = \frac{T}{0.0869 Z^{7/3}}; \quad T[\text{keV}]$$

Nach Robinson (1970) kann $g(\tau)$ geschrieben werden als

$$g(\tau) = \tau + 0.402 \tau^{3/4} + 3.40 \tau^{1/6}$$

Das modifizierte Kinchin-Pease-Modell ist jedoch in vielen Materialien nur für niedrige Rückstoßenergien unter ca. 1 keV gut erfüllt (Averback 1986). Bei höheren Energien nimmt die experimentell beobachtete Schädigungsrate rascher ab als nach Gleichung (II.1) zu erwarten ist (Averback 1978, Jung 1983, Jaouen 1985). Das Verhältnis von experimentell ermittelter zur theoretisch berechneten Schädigung wird als Effektivität der Defekterzeugung ($\xi(T) = n_{\text{exp}}(T)/n_{\text{th}}(T)$) bezeichnet.

Die Anzahl der erzeugten Defekte pro Kaskade wurde deshalb mit einer Effektivitätsfunktion $\xi(T)$ der experimentell gemessenen Anfangsschädigungsrate des elektrischen Restwiderstandes (Wallner 1987) angepaßt. Das bedeutet, $n(T)$ muß mit dem primären Rückstoßspektrum gewichtet die richtige Zunahme der Defekte mit der Bestrahlungsdosis ergeben. In Abbildung IV.16 ist der Kurvenverlauf von $n(T)$ dargestellt, wie er mit den in Abbildung IV.17 gezeigten Effektivitätsfunktionen berechnet wurde. Für die mittlere Verlagerungsenergie E_v wurde ein Wert von 66 eV (Jung 1981) eingesetzt. Das eine Mal wurde ξ energieunabhängig gleich der mittleren Effektivität

von 1.2 (Wallner 1987) gewählt (—); das andere Mal wurde eine Energieabhängigkeit der Effektivität verwendet, die der von Averbach (1983) aus Ionenbestrahlungsexperimenten gewonnenen ähnlich ist (---).

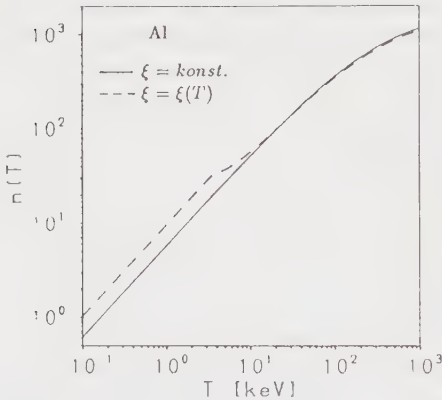


Abb. IV.16 Anzahl der erzeugten Defekte pro Kaskade der Energie T , berechnet aus dem PKA-Spektrum und mit den ξ aus Abb. IV.17 an die Anfangsschädigungsrate angepaßt.

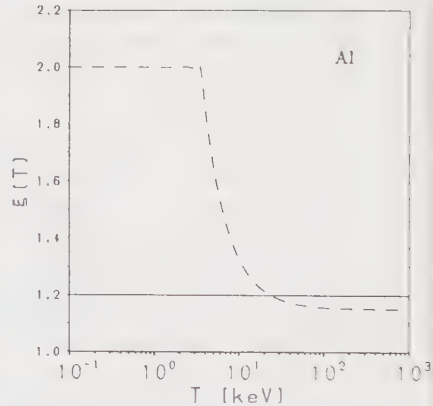


Abb. IV.17 Effektivität der Defekterzeugung.
(— konstant und
---- energieabhängig).

Beide Kurven in Abbildung IV.16 geben die gemessene Anfangsschädigungsrate des elektrischen Restwiderstandes richtig wieder. Es muß jedoch angemerkt werden, daß die Schädigungsrate um 36% zu niedrig ausfällt, wenn man direkt $\xi(T)$ von Averbach (1983), umgerechnet auf $E_d = 66$ eV, verwendet. Erst wenn die Effektivität "künstlich" um 36% erhöht wird, erreicht man Übereinstimmung mit der experimentellen Schädigungsrate. Diese Diskrepanz deutet auf eine Überschätzung der Effektivitätsabnahme hin. Das kann an den Ionenbestrahlungsexperimenten liegen, da sie nicht mit Al-Ionen, sondern einer Vielzahl verschiedener Ionen durchgeführt wurden, die unterschiedliche Kaskadenstrukturen erzeugen. Dies kann zu Fehlern in $\xi(T)$ führen (Averbach 1978, 1983).

Sieht man von dieser Unsicherheit in der Energieabhängigkeit von $\varphi(T)$ ab, die keinen großen Einfluß auf den Kaskadenfit hat, so ist der eigentliche Parameter, der an die Streukurve angepaßt wird, der Kaskadenradius. Der Funktionsverlauf für $R(T)$ wurde ähnlich der von Wilson (1977) analytisch mit Molierepotentialen berechneten Reichweite gewählt. In IV.18 ist der an die Streukurve angepaßte energieabhängige Kaskadenradius abgebildet.

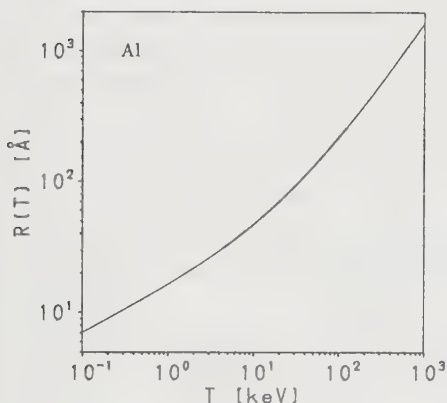


Abb.IV.18 Kaskadenradius in Abhängigkeit von der Kaskadenenergie. Ergebnis der Anpassung an die gemessene Streuintensität.

Der mit diesem $R(T)$ berechnete Fit an die Meßdaten, bei dem das ganze Rückstoßspektrum berücksichtigt wurde, ist in Abbildung IV.19 eingezeichnet. Die Berechnungen wurden mit beiden $n(T)$ -Funktionen aus Abb.IV.16 ausgeführt. An den Meßwerten wurden Auflösungskorrekturen nach dem iterativen Verfahren, das auf Seite 39 beschrieben ist, vorgenommen. Der Korrekturfaktor erreicht beim kleinsten q -Wert 100% und ist für $q > 0.05 \text{ \AA}^{-1}$ kleiner als 10%.

Im folgenden wird eine mögliche Energieabhängigkeit der Effektivität in Aluminium vernachlässigt, da sie für den Fit offensichtlich keine sehr große Rolle spielt (s. Abb.IV.19).

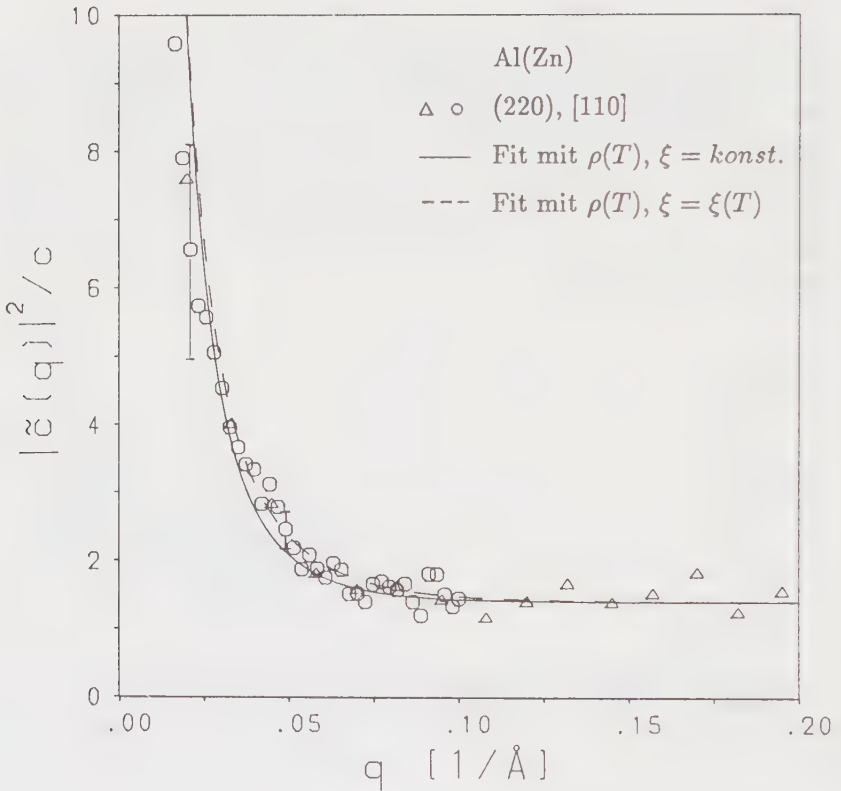


Abb.IV.19 Fits an $|\tilde{c}(q)|^2$ von Al(Zn) unter Berücksichtigung des ganzen Rückstoßspektrums $\varrho(T)$, berechnet mit den in Abb. IV.16 gezeigten $n(T)$ - Funktionen.

Aus $n(T)$ und $R(T)$ wurde die Konzentration der Defekte in der Kaskade $c(T)$ errechnet. Dabei wurde angenommen, daß sich 60% der Defekte innerhalb der Kaskade befinden (Benedek 1981). Der Rest soll außerhalb liegen und wurde als zufällig verteilt betrachtet.

$c(T)$ ist mit dem Bruchteil der erzeugten Defekte in Abbildung IV.20 dargestellt. Man sieht, daß nur ein geringer Prozentsatz der Defekte in Kaskaden mit Konzentrationen größer als 500 ppm liegt. Die Streuung an diesen kleinen, dichten Kaskaden bestimmt jedoch im wesentlichen die gemessene Korrelationsfunktion. Dies zeigt sich in Abbildung IV.21, wo nur die Defektkorrelation in Kaskaden mit $T < 30$ keV berücksichtigt wurde. Die Mehrzahl der Defekte liegt jedoch in sehr großen, weit ausgedehnten Kaskaden, die nur Streubeiträge sehr nahe am Reflex liefern. Dieser Bereich ist jedoch, wegen der begrenzten experimentellen Auflösung, nicht oder nur sehr schwer zugänglich. Die gestrichelte Kurve in Abbildung IV.21 wurde mit $R(T)/2$ gerechnet und zeigt deutlich, daß die meisten Defekte nicht in zu dichten Kaskaden liegen können.

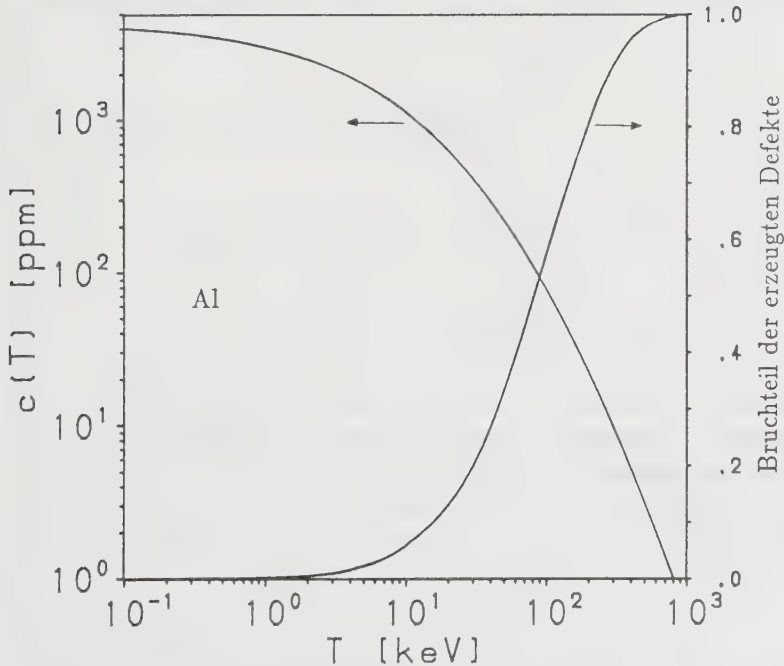


Abb.IV.20 Defektkonzentration in der Kaskade $c(T)$ und Bruchteil der erzeugten Defekte bis zur Energie T .

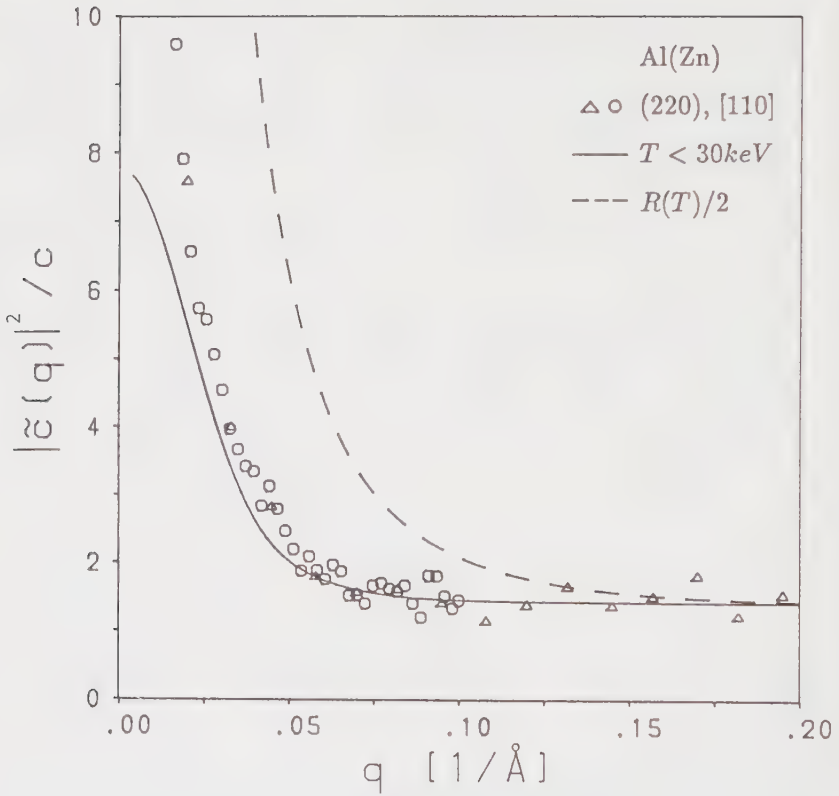


Abb.IV.21 Berechnung der Kaskadenkorrelation nur mit Kaskaden der Energie $< 30 \text{ keV}$ (—). Berechnung mit dem halben Kaskadenradius $R(T)/2$ (---).

Die wichtigsten Parameter und Ergebnisse des Kaskadenfits sind in den Tabellen IV.3 bis IV.5 zusammengefaßt. Die Einheit für T ist keV, falls nichts anderes angegeben ist.

Verlagerungsenergie: $E_V = 66 \text{ eV}$

Effektivität: $\langle \xi \rangle = 1.2$

Bruchteil der Defekte in der Kaskade: 0.6

Kaskadenradius: $R [\text{\AA}] = 15 T^{1/3} + 1.5 T$

Mittlere Agglomeration: $\langle n_{cl} \rangle = 1.4$

Tabelle IV.3 Für den Kaskadenfit verwendete Größen.

$\langle T \rangle$	$\langle T_{Sch} \rangle$	$\langle n \rangle$	$\langle R \rangle [\text{\AA}]$	$\langle V \rangle [V_a]$
36.6	17.4	126	93	$2.1 \cdot 10^5$

$$\langle x \rangle = \int x(T) \varphi(T) dT / \int \varphi(T) dT$$

Tabelle IV.4 Mittelwerte für die Defektkaskaden in Al.

T	T_{Sch}	n	$R[\text{\AA}]$	$V[V_a]$	c[ppm]	N
$\langle T \rangle = 36.6$	22	160	104	$2.9 \cdot 10^5$	330	24
$T_{1/2} = 80$	41	300	185	$1.6 \cdot 10^6$	110	50

N = Prozentsatz der erzeugten Defekte bis zur Energie T

$T_{1/2}$ = Energie bis zu der 50% aller Defekte erzeugt wurden

Tabelle IV.5 Kaskadeneigenschaften in Al für charakteristische Energien.

IV.1.4. DISKUSSION DER DEFEKT KORRELATION

Theoretische Arbeiten stimmen darin überein, daß in einem Metall mit leichten Atomen und relativ offener Gitterstruktur wie Aluminium die Defektkaskade weit ausgedehnt ist (Schilling 1969, Leibfried 1969, Neely 1966, Benedek 1981). In den letzten Jahren hat es vor allem durch Computersimulationen neue Fortschritte auf theoretischem Gebiet gegeben. Die Ergebnisse solcher Kaskadensimulationen (Benedek 1981) bestätigen unsere Resultate sehr gut, wie ein Vergleich in Abbildung IV.21 zeigt.

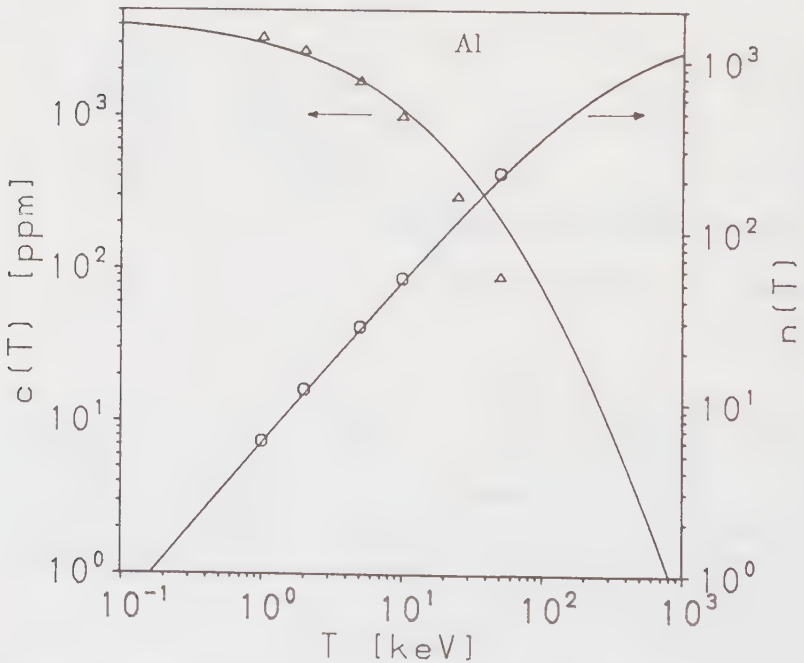


Abb. IV.22 Defektkonzentration in der Kaskade $c(T)$ und Anzahl der erzeugten Defekte pro Kaskade $n(T)$, verglichen mit Computersimulationen von Benedek (1981) ($\Delta, \circ$).

Einige Unsicherheiten in den Computerrechnungen liegen jedoch in der richtigen Wahl verschiedener Parameter wie z.B. der Verlagerungsenergie und des Rekombinationsradius (Benedek 1981, Averbach 1983). Die angestoßenen Atome werden außerdem nur so lange verfolgt, wie ihre Energie größer als E_V ist. Effekte nach Abschluß der eigentlichen Defekterzeugung, wie spontane Rekombination, werden nicht exakt berechnet, sondern nur phänomenologisch berücksichtigt. Volle dynamische Rechnungen (Gibson 1960, Schiffgens 1978, Guinan 1981, King 1983) sind bisher nur für niedrige Kaskadenenergien bis zu einigen keV möglich.

Die bisherigen experimentellen Untersuchungen der Kaskadenstruktur waren jedoch zum Teil sehr widersprüchlich und lieferten oft sehr hohe Defektkonzentrationen (Böning 1976, Mansel 1977, Grasse 1980, 1982). Ein wesentlicher Grund dafür ist die breite Größenverteilung der Kaskaden, die bisher nicht berücksichtigt wurde. Hinzu kommt, daß fast alle experimentellen Methoden nur auf sehr indirektem Weg Informationen über die Größe der Defektkaskaden liefern können. Meist wurde die Abhängigkeit einer Meßgröße von der Bestrahlungsdosis untersucht. Aus den Kaskadenüberlappeffekten kann dann auf eine effektive Größe der Kaskaden geschlossen werden. Das Ergebnis hängt von der Meßmethode und den zur Interpretation nötigen Annahmen ab. So bestimmten Böning et.al. ihr mittleres Kaskadenvolumen von $2.1 \cdot 10^5 V_a$ aus der Defektkonzentration, bei der die Niedrigfeld-Hallkonstante beginnt vom Wert für Einzeldefekte abzuweichen. Mansel et.al. ermittelten aus Mößbauereffekt-Messungen die Defektkonzentration, bei der die Anzahl freier ZGA maximal ist und schließen auf ein Kaskadenvolumen von $2 \cdot 10^5 V_a$. Es ist offensichtlich, daß diese Messungen nur ungefähre Anhaltspunkte für die Ausdehnung der Kaskaden vermitteln.

Die diffuse Röntgenstreuung ist eine aussagekräftige mikroskopische Methode zur Untersuchung der Kaskadenkorrelationen. Die Abweichung von der Huangstreuung sehr nahe am Braggreflex wurde erstmals von v. Guerard und Grasse (1980) auf die Defektkorrelation in Kaskaden zurückgeführt. Sie hatten aus ihren Messungen geschlossen, daß je 200 Defekte in Kaskaden mit 50 Å Radius korreliert sind. Daraus ergibt sich eine sehr hohe Defektkonzentration von 5000 ppm in der Kaskade, die doppelt so groß ist wie die Sättigungskonzentration von 2500 ppm (Böning 1976). Die gemessene Streuerverteilung wurde jedoch falsch interpretiert, da man versucht hat, mit nur einem Kaskadenradius scheinbare Oszillationen anzupassen, und den Anstieg bei kleinen q-Werten unberücksichtigt ließ.

Wegen der vermeintlich hohen Defektkonzentration in der Kaskade wurden von Grasse (1980) Überlappeffekte bis zu hohen Bestrahlungsdosen ($2.4 \cdot 10^{18}$ n/cm², $c = 1000$ ppm) ausgeschlossen. Die Bildung von 3er-Agglomeraten wurde auf das Zusammenlaufen von Zwischengitteratomen aus einem Gebiet mit Radius $3a$ innerhalb der dichten Kaskaden zurückgeführt. Daß nur 300 bzw. 1000 ppm Fremdatome diese Agglomeration um die Hälfte reduzieren, kann mit diesem Kaskadenmodell nicht verstanden werden. Dies gab auch mit den Anstoß, die Korrelationsfunktion genauer zu messen und für die quantitative Interpretation das ganze Rückstoßspektrum zu verwenden.

Wie im vorhergehenden Abschnitt gezeigt wurde, liegen mehr als 85% der Defekte in sehr großen, stark verdünnten Kaskaden mit Defektkonzentrationen kleiner als die mittlere Konzentration von $c = 360$ ppm, d.h. die meisten Kaskaden müssen sich bereits bei der sehr niedrigen Bestrahlungsdosis von $0.6 \cdot 10^{18}$ n/cm² mehrfach überlappen. Ein Großteil der ZGA-agglomeration kann deshalb auf die Überlagerung der Kaskaden zurückgeführt werden. Zwei Effekte spielen dabei eine wichtige Rolle. Zum einen können Ersetzungsstoßfolgen an

Zwischengitter- und Fremdatomen defokussiert werden (Agranovich 1986). Dadurch werden die Transportwege der ZGA vorzeitig unterbrochen und sie bleiben in der Nähe der Störzentren liegen. Zum anderen spielen unterschwellige Stöße in Aluminium eine große Rolle (Düsing 1969, 1970, Dimitrov 1976, Averbach 1977). Dadurch können bereits gebildete Zwischengitteratome aufeinander zubewegt werden. In beiden Fällen können die zufällig verteilten Ag- und Zn-Fremdatome als Stör- und Einfangzentren dieser Agglomeration entgegenwirken. Ist die Anzahl der FA größer als die der ZGA, so werden die Ersetzungsstoßfolgen vorwiegend an den Ag- und Zn-Atomen gestoppt und damit die Bildung von ZGA-Agglomeraten reduziert. Ebenso kann durch Einfang an den FA der Transport von bereits gebildeten ZGA durch unterschwellige Stöße zu anderen ZGA verhindert werden. Der Einfluß der Fremdatome auf die Agglomeration wird in Abschnitt V.1.4 noch ausführlicher diskutiert werden.

Um die Zahl der Fitparameter klein zu halten - es wurde nur $R(T)$ variiert -, wurden im Berechnungsschema von Abbildung IV.15 bewußt einige vereinfachende Annahmen gemacht. 60% der erzeugten Defekte sollen homogen in sphärischen Kaskaden erzeugt werden. In Wirklichkeit ist jedoch zu erwarten, daß die hochenergetischen Kaskaden in Aluminium eher langgestreckt sind und, daß Subkaskaden gebildet werden. Diese Subkaskadenstruktur ist jedoch eher in der Leerstellenverteilung und weniger in den ZGA-Gebieten zu beobachten, die stärker ausgeschmiert sind (Benedek 1981). Eine weniger homogene Defektverteilung in der Kaskade würde die Streuung an kleineren Gebieten stärker gewichten und die durchgezogene Kurve in Abb.IV.19 in Richtung auf die gestrichelte Kurve hinverschieben. Grundsätzlich läßt sich natürlich der Fit verbessern, wenn man die Anzahl der Parameter erhöht und z.B. Rotationsellipsoide verwendet (s. Abb.II.7). Ebenso lassen sich Verfeinerungen erzielen, wenn man für die Radienfunktion

anstatt nur zwei, mehr Parameter benutzt. Die wesentliche Aussage bleibt jedoch in allen Fällen gleich. Die Mehrzahl der Defekte muß in großen Kaskaden mit niedriger Defektkonzentration liegen.

Zum Schluß soll ein weiterer wichtiger Punkt diskutiert werden, der in den bisherigen Ausführungen nicht berücksichtigt wurde. Wie beeinflußt der Überlapp der Defektkaskaden die Korrelationsfunktion? Wie im theoretischen Teil bereits besprochen wurde, ändert sich der q -abhängige Teil der Korrelationsfunktion nicht, so lange die Defektverteilung in den Kaskaden durch den Überlapp nicht geändert wird. Dies führt lediglich zu einer Erhöhung der mittleren Defektkonzentration, wogegen die Abweichung von der zufälligen Defektverteilung, die durch $\xi(q)$ beschrieben wird, sich nicht ändert (s. Gl.II.33). In den Überlappbereichen agglomerieren und rekombinieren jedoch Defekte. Dies führt zu einer geänderten Defektverteilung und Korrelationsfunktion. Die Agglomeration der Zwischengitteratome wurde in den Rechnungen mit dem mittleren Agglomerationsgrad $\langle n \rangle$ berücksichtigt. Die Defektrekombination führt bei niedrigen Bestrahlungsdosen in erster Linie zu einer Verringerung des Kontrasts und damit zu einer Abnahme der Korrelationsfunktion. Auch bei einer Dosis von $0.6 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ tritt schon spontane Rekombination ein und die Schädigungsrate hat um 14% abgenommen (Nakagawa 1977). Dieser Effekt wurde vernachlässigt.

In Abbildung IV.23 werden die Korrelationsfunktionen von Al ($2.4 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$) und Al(Zn) ($0.6 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$) verglichen. Es ist deutlich zu sehen, daß mit zunehmender Bestrahlungsdosis die Kaskadenkorrelation zurückgeht. Da sich bei $2.4 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$ ($c = 1000 \text{ ppm}$) bereits die kleinen, hochkonzentrierten Kaskaden überlappen, und dort die Rekombination besonders groß ist, führt dies zu einer deutlichen Kontrastminderung und damit zu einer Schwächung von $\tilde{c}(q)$.

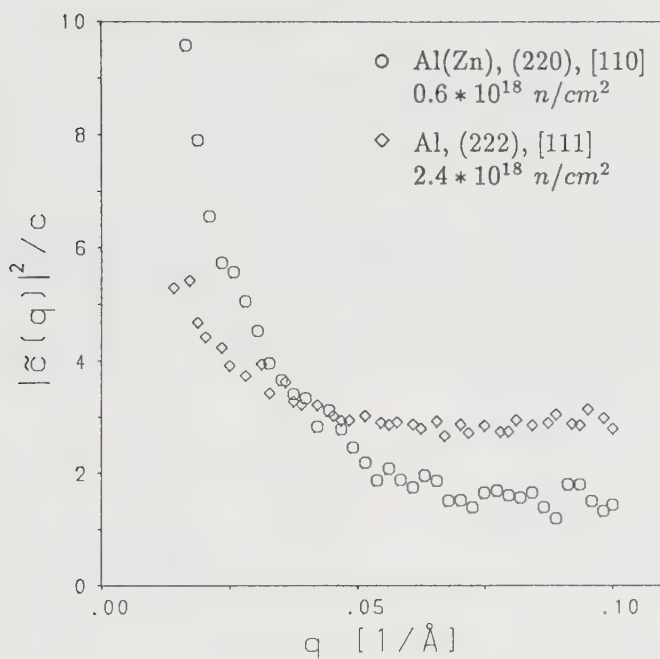


Abb.IV.23 Einfluß der Bestrahlungsdosis auf die Korrelationsfunktion.

Bei sehr hohen Bestrahlungsdosen tritt durch die Rekombination nicht nur eine Kontrastverminderung auf. Es kommt außerdem, durch die Überlagerung der Rekombinationsvolumina, zu einer Art Entmischung von Leerstellen und Zwischengitteratomen (Lück und Sizmann 1964), die zusätzliche komplizierte Korrelationen verursacht. Dieser Lück-Sizmann-Effekt spielt jedoch erst bei weit höheren als den hier diskutierten Bestrahlungsdosen eine wesentliche Rolle.

IV.2. DEFEKTKORRELATION IN REINEM KUPFER

Der reine Cu-Kristall wurde ebenso wie die reine Al-Probe mit einer Dosis von $2.4 \cdot 10^{18}$ n/cm² bestrahlt. Aus der Gitterparameteränderung ergab sich mit $\Delta V_{ZGA} = 1.55 V_a$ und $\Delta V_{LS} = 0.25 V_a$ (Ehrhart 1985) eine Defektkonzentration von 600 ppm. Eine Messung mit Cu-K α_1 -Strahlung am (222)-Reflex in [111]-Richtung ist, nach Bestrahlung und völliger Ausheilung bei 1000 K, in Abbildung IV.24 zu sehen. Aus der Asymmetrie der Streuverteilung geht wieder hervor, daß aufweitende Defekte, also Zwischengitteratome, den dominierenden Beitrag zu den Verzerrungen liefern.

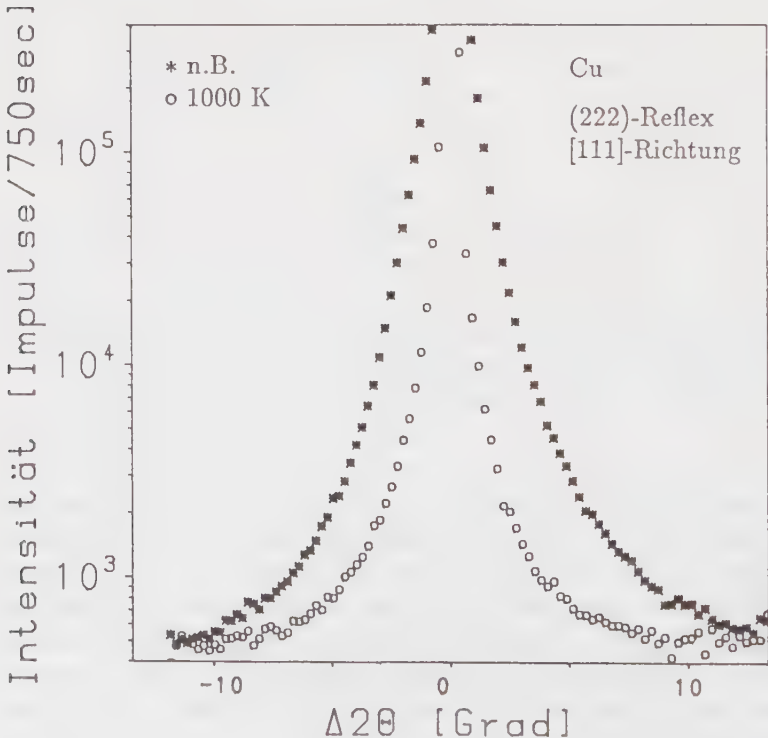


Abb.IV.24 Gestreute Intensität am (222)-Reflex von Cu nach Bestrahlung (*) und ausgeheilt (o).

In Abbildung IV.25 ist der symmetrisierte Anteil der diffusen Streuung doppeltlogarithmisch dargestellt. Gestrichelt eingezeichnet ist der numerisch berechnete Streuverlauf für [100]-ZGA-Hanteln mit der gleichen Defektkonzentration wie man sie nach Elektronenbestrahlung erwarten würde (Ehrhart 1974). Für die Rechnungen wurden der Hantelabstand und die Kanzakikräfte von (Martinsen 1978) verwendet. Über den ganzen q -Bereich ist nirgends Steigung -2 zu beobachten und die diffuse Intensität ist im Vergleich zur Streuung von Einzeldefekten stark erhöht.

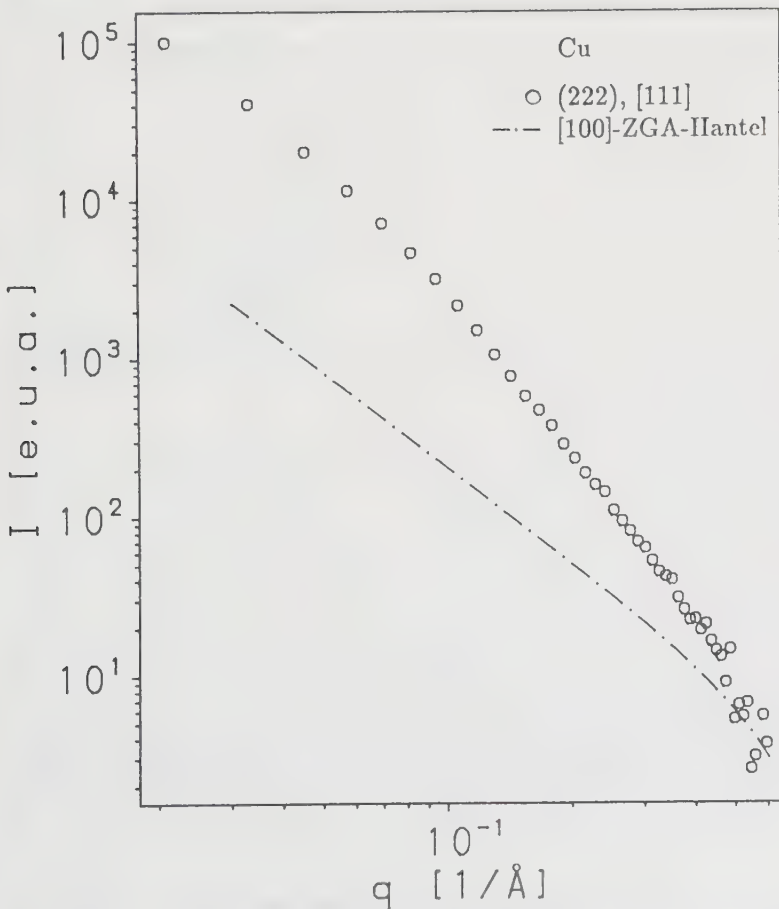


Abb.IV.25 Diffuse Streuung am (222)-Reflex von Cu in [111]-Richtung nach Bestrahlung (o). (--- numerisch berechnete Streukurve für [100]-ZGA-Hanteln).

Zur genaueren Analyse der Defektkorrelationen ist in IV.26 die Intensität multipliziert mit q^2 gegen q aufgetragen. Sie ist auf das Streuvermögen von Einzeldefekten normiert. Zunächst wurde versucht, die Streuverteilung nur durch eine Korrelationsfunktion zu erklären. Die Streubeiträge der LS wurden dabei vernachlässigt. Für die Rechnungen wurde wieder das ganze primäre Rückstoßspektrum berücksichtigt. Der bestmögliche Fit, unter vernünftigen physikalischen Annahmen, ist in Abbildung IV.26 gezeigt. Er kann jedoch die gemessene Streuverteilung nicht annähernd richtig beschreiben, obwohl der Kaskadenradius bereits sehr klein gewählt wurde.

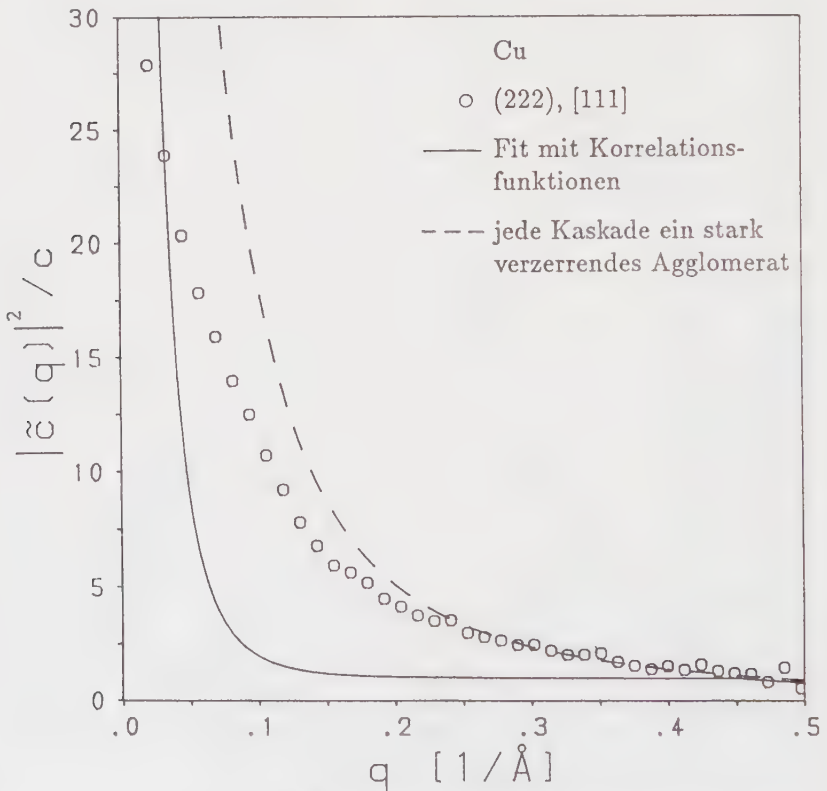


Abb.IV.26 $|\tilde{c}(q)|^2$ von Cu, am (222)-Reflex in [111]-Richtung.
 — Fit mit Korrelationsfunktionen nach Abb.IV.15.
 - - jede Kaskade ein stark verzerrendes Agglomerat.

Werden die Kaskadenradien noch wesentlich kleiner gewählt, so liefert der Fit bei kleinen q -Werten immer schlechtere Ergebnisse. Überschreitet die Defektkonzentration in der Kaskade einen bestimmten Grenzwert, dann werden die Verschiebungen so groß, daß die Streukurve nicht mehr mit einer Korrelationsfunktion erklärt werden darf (s. S. 25). Die Streuung an den Kaskaden muß dann durch die asymptotische Intensität beschrieben werden, die durch ein $1/q^4$ -Verhalten charakterisiert ist. In Abbildung IV.26 ist gestrichelt eine Kurve eingezeichnet, bei der alle Kaskaden als stark verzerrende Agglomerate betrachtet wurden. Die Verschiebungsfelder der einzelnen Defekte wurden isotrop angenähert (Gl.II.7), linear überlagert und daraus das Verschiebungsfeld der Kaskaden berechnet (Gl.II.39). Aus der Bedingung $\underline{Ku}(r_{C1})=1$ wurde dann der Übergang von der Huang- zur asymptotischen Streuung ermittelt ($q_{C1} = 1/r_{C1}$). Wie in Abbildung IV.26 zu sehen ist, kann auch dieses Modell die Streuerverteilung nicht richtig beschreiben.

Die geringe Effektivität der Defekterzeugung in Kupfer (Averbach 1978, Heinisch 1983, Wallner 1987) deutet bereits darauf hin, daß die Defekte in den sehr dichten, energiereichen Kupferkaskaden nach dem Abschluß der eigentlichen Defekterzeugung noch rekombinieren und agglomerieren können. Es wurde deshalb angenommen, daß die Zwischengitteratome innerhalb der Defektkaskaden zusammenlaufen können und eine Verteilung von dichten Agglomeraten bilden. Ein Fit an die Streukurve mit diesem Modell ist in Abbildung IV.27 zu sehen. Der Agglomerationsgrad innerhalb der Kaskade wurde, ähnlich wie die Effektivitätsfunktion, energieabhängig gewählt. Über einen weiten q -Bereich ($0.1 - 0.5 \text{ \AA}^{-1}$) bestimmt die asymptotisch diffuse Streuung der Agglomerate den Kurvenverlauf. Erst nahe am Reflex macht sich die Kaskadenkorrelation der Defekte bemerkbar.

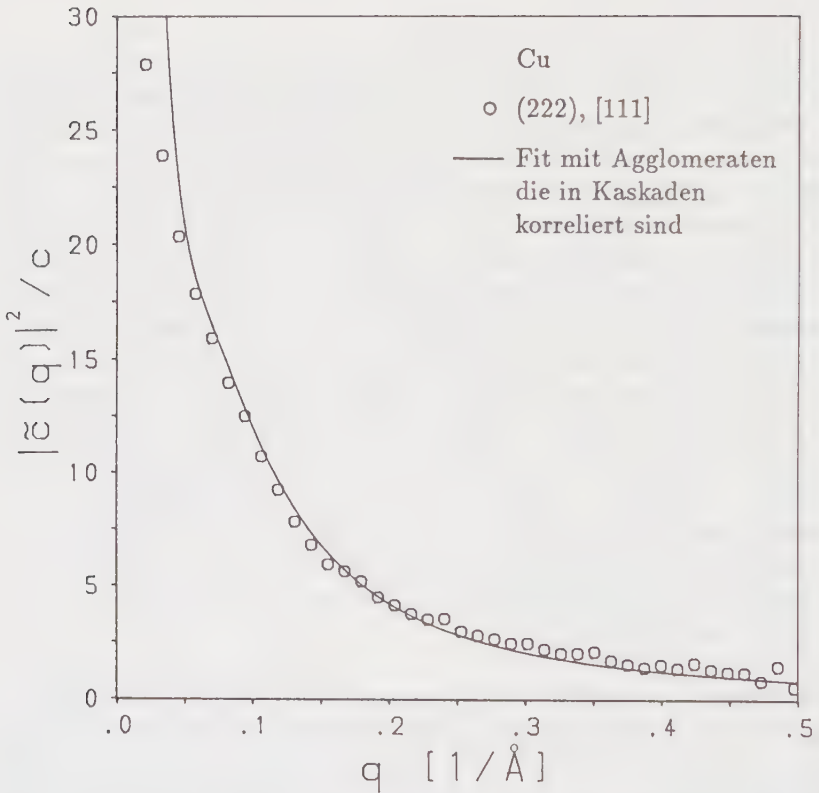


Abb.IV.27 Fit an $|\tilde{c}(q)|^2$ in Cu, mit Agglomeraten die in Kaskaden korreliert sind.

In Abbildung IV.28 ist die verwendete Funktion $n(T)$ zu sehen. Für die mittlere Verlagerungsenergie wurde ein Wert von 43 eV (Jung 1981) eingesetzt. Um $n(T)$ an die experimentelle Anfangsschädigungsrate des elektrischen Restwiderstandes anzupassen, wurde eine Energieabhängigkeit des Effektivitätsfaktors verwendet, wie sie bei Heinisch (1983) zu finden ist. Ab $T=0.5\text{keV}$ nimmt die Effektivität der Defekterzeugung rasch ab und nähert sich einem konstanten Wert von 0.42 (Abb.IV.29).

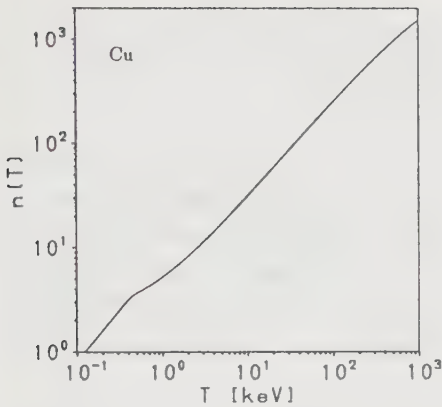


Abb. IV.28 Anzahl der erzeugten Defekte pro Kaskade der Energie T , berechnet aus dem PKA-Spektrum und mit dem ξ aus Abb. IV.29 an die Anfangsschädigungsrate angepaßt.

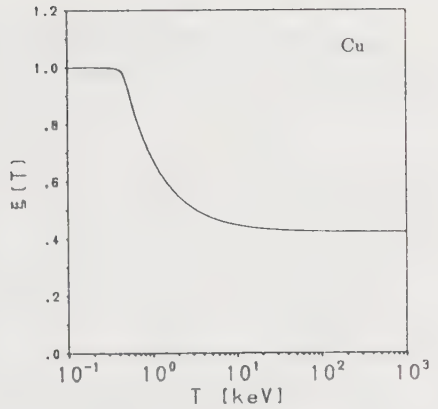


Abb. IV.29 Effektivität der Defekterzeugung.

Die Radienverteilung der Defektkaskaden ist in Abbildung IV.30 dargestellt. Aus $n(T)$ und $R(T)$ wurde die Defektkonzentration innerhalb der Defektkaskaden $c(T)$ berechnet (Abb. IV.31). Dabei wurde angenommen, daß nur 10% der Zwischengitteratome außerhalb des Kaskadenvolumens liegen, das durch den Radius festgelegt wurde. Dieser Prozentsatz wurde als zufällig verteilt angenommen und entspricht etwa dem Anteil der "freien" ZGA (Theis 1980, Goldstone 1982).

Den wesentlichen Unterschied in der Größenverteilung und Struktur der Defektkaskaden zwischen Cu und Al zeigt ein Vergleich der Abbildungen IV.20 und IV.31. In Cu ist die ZGA-Konzentration innerhalb der Kaskaden bis zu Energien von 65 keV größer als 1000 ppm. Da das Rückstoßspektrum im Vergleich zu Al zu niedrigeren Energien verschoben ist, wird die Mehrzahl der Defekte in diesen hochkonzentrierten Kaskaden erzeugt.

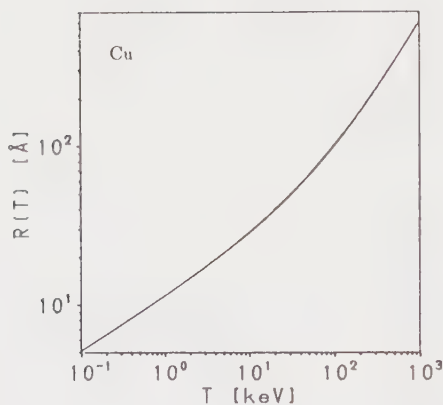


Abb.IV.30 Kaskadenradius in Abhängigkeit von der Kaskadenenergie. Ergebnis der Anpassung an die gemessene Streuintensität.

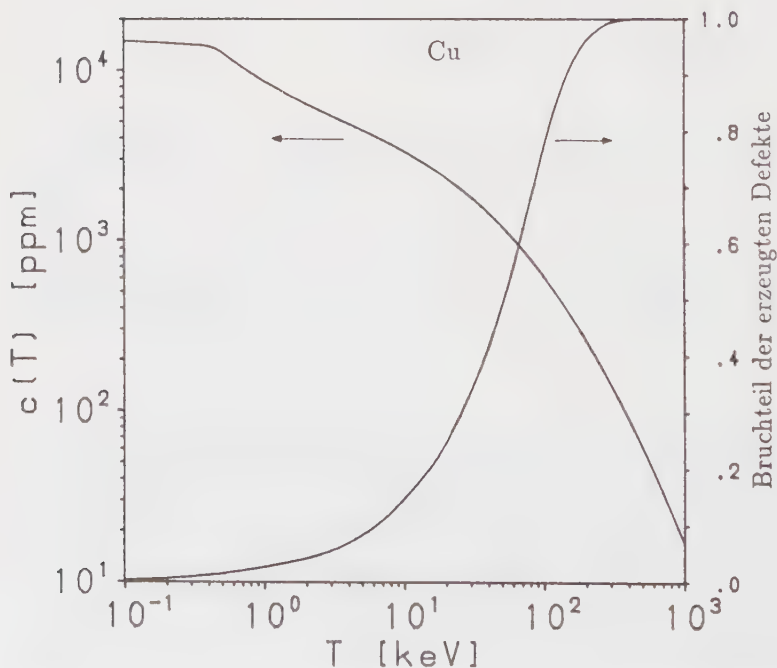


Abb.IV.31 Defektkonzentration in der Kaskade $c(T)$ und Bruchteil der erzeugten Defekte bis zur Energie T .

Die Parameter und Ergebnisse des Fits sind in den Tabellen IV.6 bis IV.9 zusammengefaßt. Die Energieeinheit ist keV, falls nichts anderes angegeben ist.

Verlagerungsenergie: $E_V = 43 \text{ eV}$

Effektivität: $\xi = 0.26/T + 0.42 \wedge \xi < 1 ; \langle \xi \rangle = 0.44$

Bruchteil der Defekte in der Kaskade: 0.9

Kaskadenradius: $R[\text{\AA}] = 11 T^{1/3} + 0.5 T$

Mittlere Agglomeration: $\langle n_{C1} \rangle = 14$

Tabelle IV.6 Für den Kaskadenfit verwendete Größen.

$\langle T \rangle$	$\langle T_{Sch} \rangle$	$\langle n \rangle$	$\langle R \rangle [\text{\AA}]$	$\langle V \rangle [V_a]$
11.1	7.6	31	22	3800

Tabelle IV.7 Mittelwerte für die Defektkaskaden in Cu.

T	T_{Sch}	n	$R[\text{\AA}]$	$V [V_a]$	$c [\text{ppm}]$	N
11.1 = $\langle T \rangle$	8.3	34	30	9700	3200	28
50 = $T_{1/2}$	34	135	65	99000	1200	50

Tabelle IV.8 Kaskadeneigenschaften in Cu für charakteristische Energien.

Computersimulationen von Benedek (1981) bestätigen, daß die ZGA-Konzentration in den Kaskaden bis zu großen Energien über 1000 ppm liegt (Abb.IV.32). Thermal spike Effekte, die nach der eigentlichen Defekterzeugung zur Agglomeration und Rekombination führen, wurden jedoch in den Simulationen nicht berücksichtigt. Dies hat zur Folge, daß die Anzahl der erzeugten Defekte in den Computersimulationen um einen Faktor zwei zu hoch ist. Volle dynamische Simulationen von großen, energiereichen Kaskaden sind aber bis heute nicht möglich. Es gibt jedoch neuere Computersimulationen, bei denen thermal spike Effekte auf phänomenologische Weise mit berücksichtigt werden (Heinisch 1983).

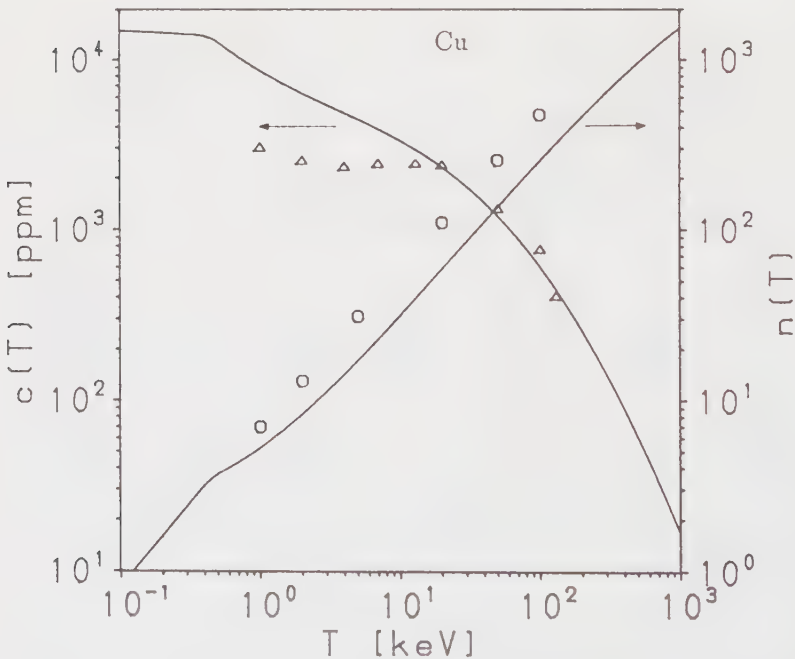


Abb.IV.32 Defektkonzentration in der Kaskade $c(T)$ und Anzahl der erzeugten Defekte pro Kaskade $n(T)$, verglichen mit Computersimulationen von Benedek (1981) ($\Delta, \circ$).

Da die Cu-Kaskaden sehr klein sind, spielen Kaskadenüberlapp-effekte in Kupfer, trotz der höheren mittleren Defektkonzentration, keine wesentliche Rolle. Von v.Guerard (1974) und von Grasse (1980) wurde Cu mit $4.2 \cdot 10^{18}$ bzw. $0.6 \cdot 10^{18}$ n/cm² bestrahlt und über einen kleineren q-Bereich gemessen. Ebenso wie in dieser Arbeit war die diffuse Intensität nahe am Braggreflex um den Faktor 25 gegenüber der Streuung von zufällig verteilten Einzeldefekten erhöht. Das bedeutet: die Streuverteilung bei kleinen q-Werten ist über einen größeren Bereich von der Bestrahlungsdosis unabhängig und muß eine Eigenschaft der einzelnen Defektkaskade sein. Die gemessene diffuse Intensität wurde von Grasse auf die Streuung von losen Kaskaden zurückgeführt. Dieses Modell entspricht der durchgezogenen Kurve in Abb.IV.26. Von Guerard hat dagegen die ganze Kaskade als ein stark verzerrendes Agglomerat betrachtet, was der gestrichelten Kurve in IV.26 gleichkommt. Wie an Hand der Abbildungen IV.26 und IV.27 gezeigt wurde, liegt die richtige Lösung in der Mitte zwischen beiden Vorschlägen.

Wegen der starken Agglomeration der Defekte in Cu nach Bestrahlung waren zum Fit der experimentellen Streuverteilung mehr Annahmen und Näherungen nötig als in Al. Die Streuung der ZGA-Agglomerate wurde z.B. nur näherungsweise berechnet. Da außerdem die asymptotische Streuung der ZGA-Agglomerate über einen großen q-Bereich dominiert, konnte die Kaskadenkorrelation nur noch über einen kleinen q-Bereich angepaßt werden, und die Ergebnisse sind entsprechend mit größeren Fehlern behaftet. Es wäre auch denkbar, die gemessene Streukurve nur mit einer Verteilung von unkorrelierten Defektagglomeraten anzupassen. Da dies aber nur möglich ist, wenn mehrere Agglomerate pro PKA erzeugt werden, ist es physikalisch nicht sinnvoll, die Kaskadenkorrelation unberücksichtigt zu lassen. Schließlich wurde wie in Al auch beim Cu die Streuung der Leerstellen vernachlässigt. Diese Annahme ist jedoch wegen der möglichen Agglomeration der LS und ihres größeren Streuvermögens in Cu weniger gerechtfertigt als in Al und wird in Abschnitt V.2 noch ausführlicher diskutiert.

V. ERGEBNISSE BEI THERMISCHER ERHOLUNG

Bei höheren Temperaturen werden Zwischengitteratome und Leerstellen beweglich und können durchs Gitter wandern. Die physikalischen Effekte, die dabei ablaufen, faßt man unter dem Begriff "thermische Erholung" zusammen. Sie wird im wesentlichen von zwei Punkten bestimmt: zum einen von der Wechselwirkung der vorhandenen Defekte untereinander, d.h. der Zwischengitteratome, der Leerstellen und Fremdatome; zum anderen von der ursprünglichen Defektverteilung, durch die die Länge der Diffusionswege zu den jeweiligen Reaktionspartnern gegeben ist.

Die Wechselwirkung wird vereinfachend oft durch Einfang- und Rekombinationsvolumen beschrieben. Die Folgen der Wechselwirkung sind: Agglomeration der Defekte, Einfang an Fremdatomen und Rekombination von Zwischengitteratomen und Leerstellen.

Die Kenntnis der primären Kaskadenstruktur ist einerseits Voraussetzung, um das Verhalten bei thermischer Erholung zu verstehen, andererseits lassen sich aber aus dem Ausheilverhalten auch Rückschlüsse auf die ursprüngliche Defektverteilung ziehen, wenn man Informationen über die Wechselwirkung der Defekte hat.

V.1. EINFLUSS DER FREMDATOME AUF DIE DEFEKTDIFFUSION IN AL

In diesem Kapitel soll der Einfluß der Ag- und Zn-Fremdatome auf die Wanderung der Zwischengitteratome und Leerstellen untersucht werden. Sowohl Silber- ($\Delta V_{Ag} = 0.04 V_a$) als auch

Zinkatome ($\Delta V_{Zn} = -0.05 V_a$) verzerren das Aluminiumgitter nur sehr wenig (Dworschak 1976). Trotzdem besitzen sie ein großes Einfangvolumen für Zwischengitteratome. Dies zeigen z.B. Messungen der Schädigungsrate bei Elektronenbestrahlung oberhalb Stufe I, wo Zwischengitteratome beweglich sind und an den Fremdatomen eingefangen werden können (Dworschak 1976).

V.1.1. DEFECTREKOMBINATION

Wenn man annimmt, daß sich der Widerstandsbeitrag pro Frenkeldefekt und das Relaxationsvolumen durch Agglomeration und Einfang an Fremdatomen nicht ändert, so ist die Erholung des elektrischen Restwiderstandes und des Gitterparameters durch die Rekombination der Defekte gegeben. In den Abbildungen V.1 und V.2 ist das Erholungsverhalten dieser Größen für die beiden Al-Legierungen dargestellt und wird mit reinem Al (Grasse 1980) verglichen. Man sieht, daß vor allem zwischen 40 und 70 K, wo Einzel-ZGA und kleinere Agglomerate frei wandern können, die Rekombination durch den Einfang an Fremdatomen reduziert wird. Die korrelierte Rekombination, zu Beginn der Stufe I bis 35 K, wird dagegen von den Fremdatomen nur wenig beeinflusst, wenn sie in einer Konzentration vorliegen, die kleiner oder vergleichbar mit der lokalen Defektkonzentration ist (s. auch Rosner 1979). Bei höheren Temperaturen, etwa ab 100 K, nähern sich die Erholungskurven wieder an.

Offensichtlich können sich Zwischengitteratome von ihren Haftstellen befreien und vermehrt mit Leerstellen rekombinieren (Dworschak 1976). Ein Einfluß der Fremdatome auf die Leerstellenwanderung in Stufe III, bei etwa 200 K, wurde nicht beobachtet. Bei 280 K ist die thermische Erholung nahezu vollständig erreicht.

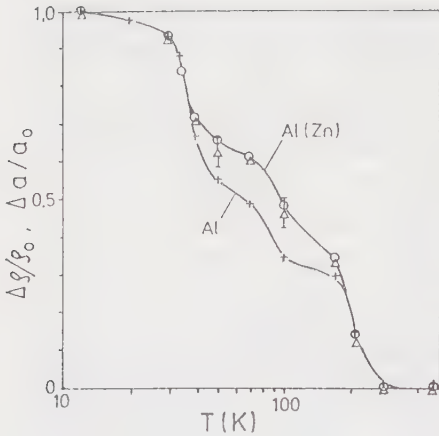


Abb.V.1 Erholung von $\Delta g/g_0$ (o) und $\Delta a/a_0$ (Δ) von Al(Zn), verglichen mit $\Delta g/g_0$ von reinem Al (+).

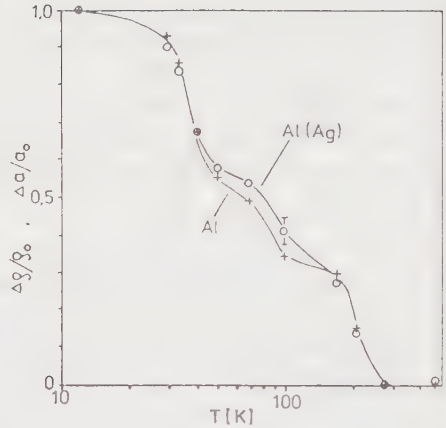


Abb.V.2 Erholung von $\Delta a/a_0$ von Al(Ag) (o), verglichen mit $\Delta g/g_0$ von reinem Al (+).

Der Effekt auf das Erholungsverhalten hängt von der Fremdatomkonzentration ab. Dies zeigt sich in einem geringeren Einfluß der 300 ppm Ag-Atomkonzentration im Vergleich zu den 1000 ppm beim Al(Zn). Dabei wurde angenommen, daß Ag und Zn ähnlich große Einfangvolumina haben (Dworschak 1976).

V.1.2. DEFEXTAGGLOMERATION

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, daß die Fremdatome die Diffusion der Zwischengitteratome behindern. Dies reduziert nicht nur die Rekombination, sondern auch die Agglomeration der Zwischengitteratome wie in Abbildung V.3 zu sehen ist. Besonders stark wird die Agglomeration zwischen 40 und 70 K unterdrückt, um dann wieder stärker anzuwachsen. Die

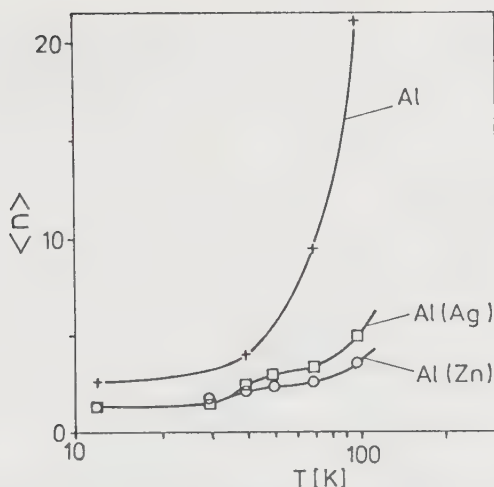


Abb.V.3 Mittlere Zahl der ZGA pro Agglomerat bei thermischer Erholung. ($\square$ Al(Ag), $\circ$ Al(Zn), + Al (Grasse 1980)).

Fremdatome wirken offenbar als Kondensationskeime und führen zur Bildung von sehr vielen, aber dafür kleineren Agglomeraten, verglichen mit reinem Aluminium. Bei höheren Temperaturen in Stufe II können dann sowohl kleine Agglomerate beweglich werden, als auch an den FA eingefangene ZGA den flacheren Haftstellen entkommen (Dworschak 1976) und agglomerieren oder rekombinieren.

Der mittlere Agglomerationsgrad $\langle n \rangle$, der in Abb.V.3 aufgetragen ist, wurde dabei aus der Huangstreuung und der Defektkonzentration bestimmt, die aus der Änderung des elektrischen Restwiderstandes und des Gitterparameters ermittelt wurde. Die mit der Defektkonzentration normierte Streuverteilung ist für einige ausgewählte Erholungstemperaturen für eine Al(Zn)- und für eine Al(Ag)-Probe in V.4 und V.5 abgebildet. Die Erhöhung der Huangstreuung spiegelt in dieser Darstellung direkt das Anwachsen des Agglomerationsgrads wider.

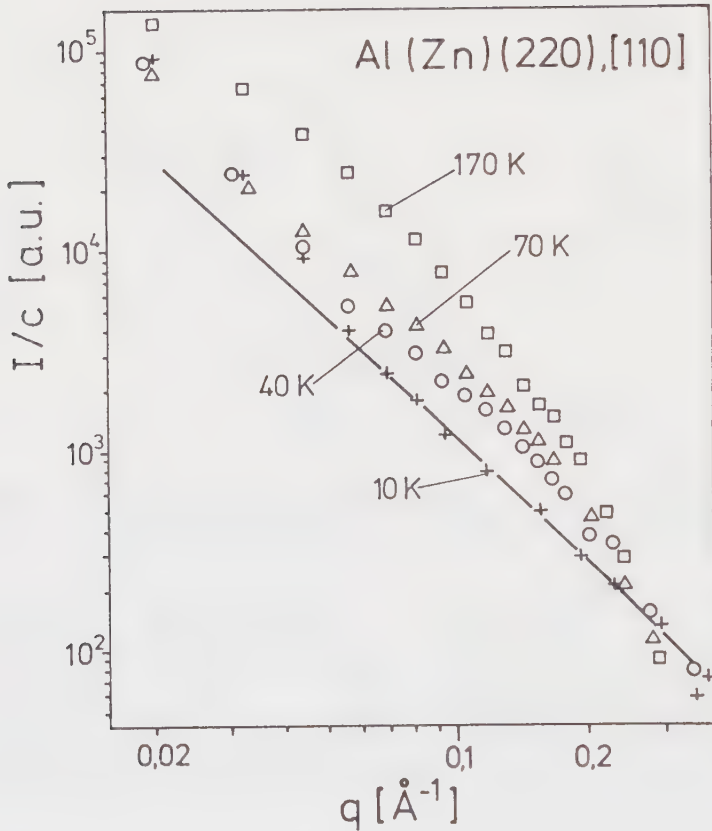


Abb.V.4 Diffuse Streuung am (220)-Reflex von Al(Zn) nach Bestrahlung und verschiedenen Erholungstemperaturen.
(— Streukurve für [100]-ZGA-Hanteln, der gemessenen Streuverteilung nach Bestrahlung angepaßt).

Die Bildung von größeren Agglomeraten ist auch am geänderten q -abhängigen Verlauf der Streukurve in den Abbildungen V.4 und V.5 zu beobachten. Je größer die Agglomerate werden, desto stärker wird die Umgebung der Defekte verzerrt, und der Übergang zur asymptotischen Streuung erfolgt bei kleineren q -Werten (s. Abb.II.2).

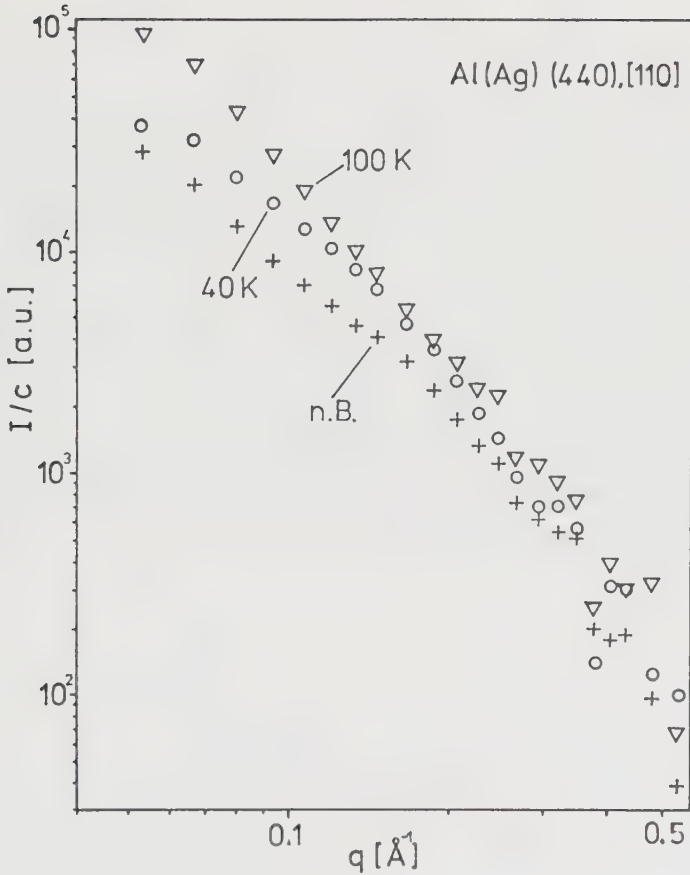


Abb.V.5 Diffuse Streuung am (440)-Reflex von Al(Ag) nach Bestrahlung und verschiedenen Erholungstemperaturen.

Der Agglomerationsgrad, der aus dem Übergangsbereich Huang-Streuung zur Stokes-Wilson-Streuung ermittelt wurde, stimmt gut mit den in Abbildung V.3 gezeigten Werten überein. Zwischen 40 und 70 K beträgt er etwa 2 bis 3 und wächst auf 4 bis 5 bei 100 K an.

V.1.3. ÄNDERUNG DER KASKADENKORRELATION

Bei kleineren q -Werten beobachtet man, daß mit zunehmender Erholungstemperatur auch die Korrelationsfunktion zurückgeht. Dies ist deutlicher in Abbildung V.6 in der üblichen Iq^2 Auftragung für eine Messung mit guter Auflösung gezeigt. Die Kurven sind auf die mittlere Defektkonzentration c normiert. Man sieht, daß die Korrelationsfunktion in Al(Zn) nicht sofort mit höheren Erholungstemperaturen verschwindet, sondern auch dann, wenn ZGA bereits frei wandern können, zum Teil noch erhalten bleibt. Dies ist auf den Einfluß der Fremdatome zurückzuführen, da sie die Wanderung der ZGA über größere Bereiche unterbinden. Dadurch werden die ZGA in der eigenen Kaskade festgehalten und einer Auflösung der Kaskadenstrukturen wird damit entgegengewirkt.

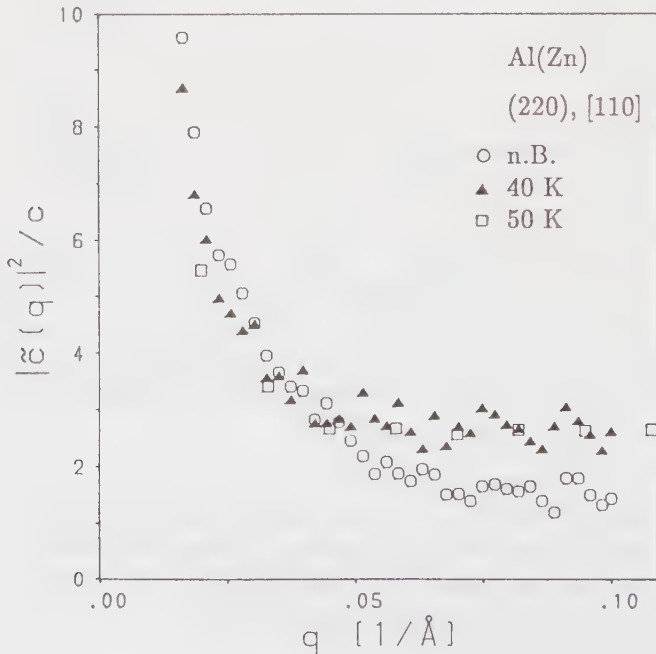


Abb.V.6 Änderung der Korrelationsfunktion bei thermischer Erholung von Al(Zn).

In der reinen Al-Probe dagegen ist die Kaskadenkorrelation bei 50 K, nach der freien Wanderung der Zwischengitteratome in Stufe I, vollständig verschwunden (Abb.V.7). Da nach Bestrahlung bereits Agglomerate vorliegen, die im Mittel aus 3 ZGA bestehen, müssen entweder diese Defekte als Ganzes wandern können oder vorher dissoziieren, um die eigene Kaskade verlassen zu können. Die thermische Erholung in elektronenbestrahltem Al bis 50 K kann mit der Wanderung von Einzel- und Doppel-ZGA allein erklärt werden, aber auch die Beweglichkeit von 3er-Agglomeraten kann bis zu dieser Temperatur nicht ausgeschlossen werden (Roberto 1978). Da bereits 40% der Defekte in neutronenbestrahltem Al in Stufe I, wo nur Einzel-ZGA beweglich sind, rekombinieren, kann man annehmen, daß zumindest ein Teil der während der Bestrahlung gebildeten ZGA-Agglomerate nicht stabil ist und dissoziiert.

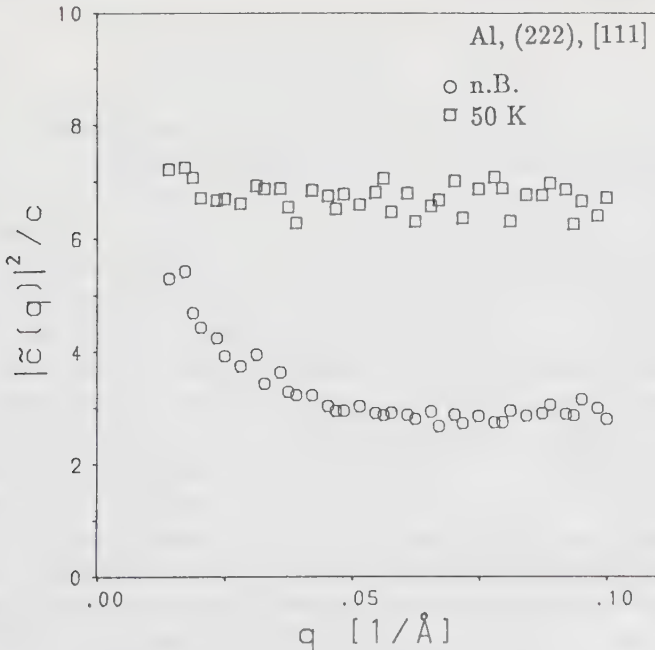


Abb.V.7 Änderung der Korrelationsfunktion bei thermischer Erholung von reinem Al.

V.1.4. DISKUSSION DES AUSHEILVERHALTENS

Für das Ausheilverhalten ist neben der primären Kaskadenstruktur die Wechselwirkung der Defekte untereinander von grundlegender Bedeutung. So hängt z.B. die Stabilität der während der Bestrahlung gebildeten FA-ZGA-Komplexe und Eigen-ZGA-Agglomerate sowohl von ihrer Struktur als auch den Defektwechselwirkungen ab.

Wegen ihrer großen lokalen Gitterverzerrungen und starken elastischen Polarisierbarkeit wechselwirken Zwischengitteratome stark mit den Spannungsfeldern anderer Defekte (Schilling 1978). Bei stark verzerrenden Defekten ist die elastische Wechselwirkung für die Drift von Zwischengitteratomen zu diesen Defekten hin verantwortlich. Sie kann nach Trinkaus (1975) geschrieben werden als

$$E(\underline{r}) = - \sum_{ij} \epsilon_{ij}(\underline{r}) P_{ij} - \frac{1}{2} \sum_{ijkl} \epsilon_{ij}(\underline{r}) \alpha_{ijkl} \epsilon_{kl}(\underline{r}) \quad (\text{V.1})$$

wobei ϵ_{ij} die Spannung am Ort des Zwischengitteratoms ist, die vom Reaktionspartner im Abstand $\underline{r}$ verursacht wird und α_{ijkl} die elastische Polarisierbarkeit des ZGA angibt. Der erste Term ist ein "Größeneffekt". Er beschreibt die Wechselwirkung von permanenten Kraftdipolen und fällt deshalb mit $1/r^3$ ab. Es gibt Richtungen, in denen dieser Term anziehend oder abstoßend ist; über alle Winkel gemittelt ist er jedoch Null. Diese Wechselwirkung nimmt mit der Anisotropie der Spannungsfelder zu, die sowohl von der Anisotropie des Gitters als auch der der Defekte verursacht wird. Der zweite Term beschreibt die induzierte Dipol-Dipol-Wechselwirkung, die analog zur van der Waals-Wechselwirkung mit $1/r^6$ abnimmt und deshalb nur für kleine Abstände bedeutsam wird. Da α für Eigenzwischengitteratome positiv ist, wirkt dieser Ausdruck in allen Richtungen anziehend. Durch die induzierte Wechselwirkung gibt es deshalb um den Reaktionspartner immer ein

Volumen, in dem die Wechselwirkung für Zwischengitteratome anziehend ist. Außerhalb dieses Gebiets können sowohl anziehende als auch abstoßende Kräfte auftreten, die für größere Entfernungen vom ersten Term in Gleichung V.1 bestimmt werden. Trinkaus (1975) hat mit Kontinuumstheorie eine Näherung für die Größe der beiden Terme in Gleichung V.1 berechnet. Das Maximum für die permanente Dipolwechselwirkung liegt in [100]-Richtung und beträgt

$$E_{max}^{per} \approx -(a/r)^3 \begin{cases} 0.1 \text{ eV} & \text{für Al} \\ 0.5 \text{ eV} & \text{für Cu} \end{cases} \quad (V.2)$$

Das Maximum der induzierten Wechselwirkung liegt in [111]-Richtung und beträgt

$$E_{max}^{ind} \approx -(a/r)^6 1 \text{ eV für Al und Cu} \quad (V.3)$$

Für $r \approx 3a$ ergibt sich daraus für die induzierte Wechselwirkung eine Energie, die $T \approx 10 \text{ K}$ entspricht. Ab diesem Abstand werden die Anziehungskräfte für die Defektagglomeration bei Bestrahlung bedeutsam. Um die Wechselwirkung und Wanderung der Defekte vollständig zu beschreiben, müßte man jedoch das ganze "Potentialgebirge", das von den Defekten verursacht wird, nicht nur mit allen Senken, sondern auch den Sattelpunkten kennen. Aus dem Maximum der induzierten Wechselwirkung kann man abschätzen, daß der Abstand zwischen zwei ZGA, über alle Richtungen gemittelt, nicht kleiner als $2a$ sein darf, damit sie bei höheren Temperaturen dissoziieren können. Daß diese Bedingung tatsächlich erfüllt ist, wird durch Hall-Effekt-Messungen von Böning (1975) bis zu hohen Bestrahlungsdosen bestätigt. Ähnliche Ergebnisse zeigen Thermokraftmessungen von Sieber (1977). Haben sich jedoch erst einmal dichte Agglomerate gebildet, so lösen sie sich nicht mehr auf, da ihre Dissoziationsenergie zu hoch ist (Schilling 1978).

Ag- und Zn-Fremdatome verzerren, im Gegensatz zu Zwischengitteratomen, das Gitter nur sehr schwach. Trotzdem besitzen sie einen großen Einfangradius für wandernde Zwischengitteratome, der nicht mit elastischer Wechselwirkung erklärt werden kann (Dworschak 1978, 1976). Prakash (1979) führt neben dem Größeneffekt Valenzeffekte der Verunreinigungen zur Interpretation der Einfangradien an. Das Einfangpotential wird jedoch, ähnlich wie bei den ZGA, durch unterschiedlich tiefe Grundzustände und verschieden hohe Sattelpunktenergien beschrieben (Dworschak 1976). Die stabilsten Haftstellen befinden sich in der unmittelbaren Umgebung der Fremdatome (Bolze 1985, Swanson 1979) und können die Zwischengitteratome bis zur Leerstellenwanderung bei 200 K festhalten. Daß die korrelierte Rekombination von den Fremdatomen nicht unterdrückt wird, zeigt, daß nicht die tiefsten Haftstellen besetzt sind. Die Zwischengitteratome können zunächst den flachen Einfangpotentialen der Fremdatome entkommen und mit benachbarten Leerstellen rekombinieren. Bei Fremdatomkonzentrationen von 300 und 1000 ppm wird bei 54 K bereits ein großer Teil des Gitters von den Einfangvolumina der Ag- und Zn-Atome überdeckt (Dworschak 1976). Die Zwischengitteratome, die der korrelierten Rekombination entkommen sind, können dann von Fremdatomen getrappt werden. Auf diese Weise wird die weitere Agglomeration und Rekombination behindert.

V.2. REINES KUPFER UND ALUMINIUM

Im vorhergehenden Abschnitt wurde die Agglomeratgröße aus der Huangstreuung und dem Übergang zur asymptotischen Streuung bestimmt. Dies ist jedoch nur so lange möglich, wie der Agglomerationsgrad klein ist, und damit die Huangstreuung beobachtet werden kann. Werden die Agglomerate und damit die Verzerrungen zu groß, so kann die Huangstreuung experimentell nicht mehr beobachtet werden, und die Information über die Defekte muß allein aus der asymptotischen Streuung gewonnen werden. Große Agglomerate neigen dazu, Versetzungsringe zu bilden. Reines Al und Cu wurden im wesentlichen mit dem Ziel untersucht, diese flächenhaften Defekte zu studieren.

V.2.1. BILDUNG VON VERSETZUNGSRINGEN

Um die Größenverteilung und Konzentration von ZGA- und LS-Versetzungsringen zu ermitteln, besitzt die asymptotische Streuung ($I_a \sim KbR^2/q^4$) (Gl.II.26) weitere Vorteile gegenüber der Huangstreuung ($I_H \sim K^2b^2R^4/q^2$) (Gl.II.21). Sie mißt das zweite Moment (R^2) der Größenverteilung anstelle des vierten (R^4) und ist außerdem auf das Vorzeichen des Burgersvektors $\underline{b}$ empfindlich, kann also LS- und ZGA-Loops unterscheiden.

Sinnvollerweise trägt man die Intensität multipliziert mit q^4 gegen q auf. In Abbildung V.6 ist für Kupfer die diffuse Streuverteilung am (222)-Reflex in [111]-Richtung nach Bestrahlung und verschiedenen Temperstufen in dieser Art aufgetragen. Für größere q -Werte wurde über jeweils drei Meßpunkte integriert, um die Statistik zu verbessern. Dennoch sind die Fehler für größere Abstände vom reziproken Gittervektor beträchtlich. Es fällt auf, daß sich bei positiven q -Werten die Streuverteilung, die dort vor allem durch die ZGA bestimmt wird, stark ändert, während sie auf der negativen

Seite, die eher auf Leerstelleneigenschaften reagiert, fast unverändert bleibt. Dies deutet darauf hin, daß in erster Linie die Zwischengitteratome agglomerieren, wogegen die Leerstellenverteilung bis 300 K ziemlich stabil bleibt.

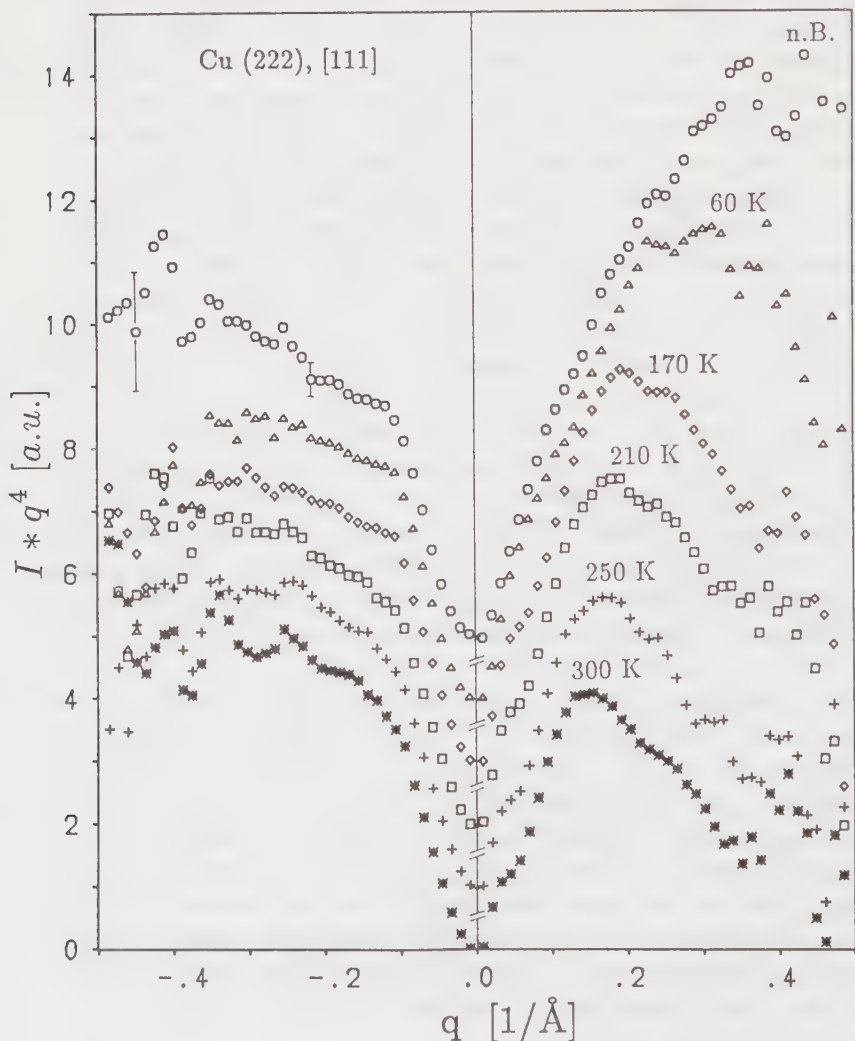


Abb.V.6 Diffuse Streuung um den (222)-Reflex von Cu multipliziert mit q^4 , nach Bestrahlung und verschiedenen Erholungstemperaturen (Iq^4 jeweils um 1 versetzt).

Daß sich bei positiven q -Werten ab 60 K ein Maximum ausprägt, zeigt, daß die Zwischengitteratome Versetzungsringe bilden (s. S. 17). Zur weiteren Interpretation des Erholungsverhaltens ab 60 K wird angenommen, daß die Defekte, die zur Streuintensität beitragen, größtenteils in Loops vorliegen. Diese Annahme wird in bezug auf ZGA von der Beobachtung von v. Guerard (1974) gestützt, daß sich bei Erholung am Ende der Stufe I die Defektsymmetrie in einer Form ändert, die auf die Bildung von ZGA-Loops hinweist. Auch Computersimulationen von Ingle et.al. (1981) zeigen, daß Agglomerate mit mehr als 13 ZGA bevorzugt zweidimensionale Scheiben in (111)-Ebenen bilden. Andererseits können bis in Stufe III Leerstellen einzeln oder in kleinen, dreidimensionalen Agglomeraten vorliegen. Sie tragen jedoch dann wegen ihrer kleinen Relaxationsstärke ($\Delta V_{LS}(\text{Einzel}) = -0.25 V_a$) nicht wesentlich zur Streuintensität bei. Kleinere LS-Agglomerate könnten auch Stapelfehler-tetraeder an Stelle von Loops bilden. Beide Defekte würden im asymptotischen Bereich ähnlich streuen und könnten dort nicht unterschieden werden (Larson 1982).

Um die Größenverteilung und Häufigkeit der ZGA- und LS-Loops zu ermitteln, wurden Fits an die Kurven ab Temperstufe 60 K durchgeführt. Dazu wurden die numerisch berechneten Streuverteilungen aus Abb.II.5 benutzt. Für die Zwischengitteratome wurden, wegen der bei kleinen positiven q -Werten auftretenden "Schulter", perfekte Loops verwendet. Für die Leerstellen wurden Frank-Loops benutzt. In Abbildung V.9 ist ein Fit an die Streuverteilung, mit den LS- und ZGA-Beiträgen, an einem Beispiel gezeigt. Man sieht, daß der Einfluß der Zwischengitteratome auf die negative Seite und umgekehrt, die der Leerstellen auf die positive Seite, gering ist.

Die Anzahl der Defekte n_L pro Loop ist durch das Loopvolumen in Einheiten des Atomvolumens gegeben:

$$n_L = \frac{b \pi R_L^2}{V_u} \quad (V.4)$$

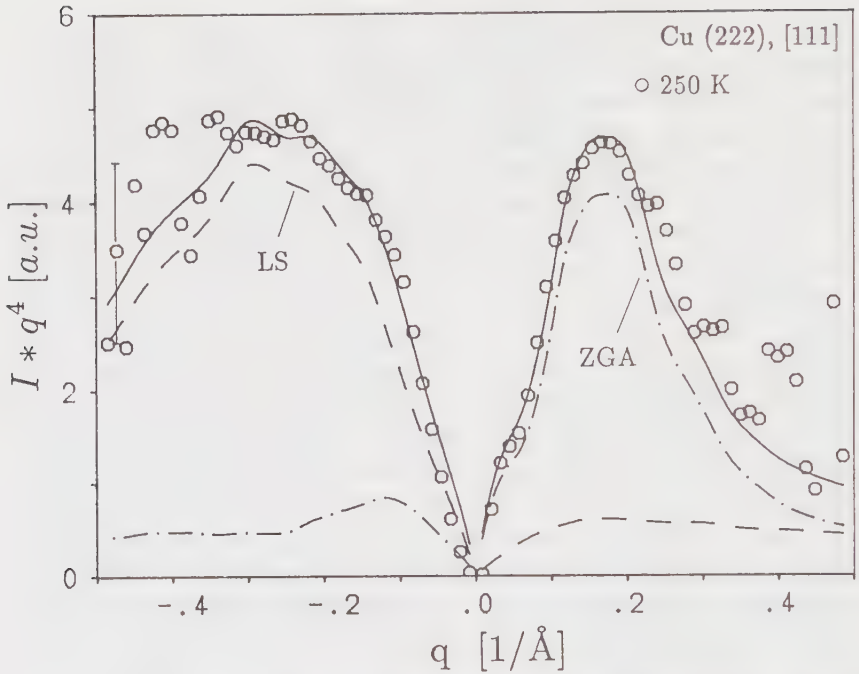


Abb.V.9 Fit der diffusen Streuung um den (222)-Reflex von Cu nach Tempern auf 250 K mit einer Verteilung von ZGA- (---) und LS-Loops (- -).

Der Streubeitrag einer Loopgröße ist durch seine Häufigkeit h_L und durch das Streuvermögen des einzelnen Loops ($\sim bR_L$) bestimmt:

$$I_L \sim h_L b R_L^2 \sim h_L n_L \quad (\text{V.5})$$

Vier Loops mit Radius $10 \text{ \AA}$ liefern also die gleiche Höhe des Intensitätsmaximums wie ein $20 \text{ \AA}$ Loop, da sie genauso viele Defekte wie dieser enthalten. Allerdings liegt das Maximum der kleinen Loops beim doppelten Abstand vom reziproken Gittervektor, da $q_{\text{max}} \sim 1/R_L$ ist (s. S. 19).

Die aus den Fits gewonnene Größenverteilung der Zwischengitteratom- und Leerstellenloops ist in Abbildung V.10 dargestellt. Es ist klar zu sehen, wie mit zunehmender Ausheiltemperatur immer größere ZGA-Loops gebildet werden, die auf Kosten der kleineren, die beweglich werden, wachsen. Die

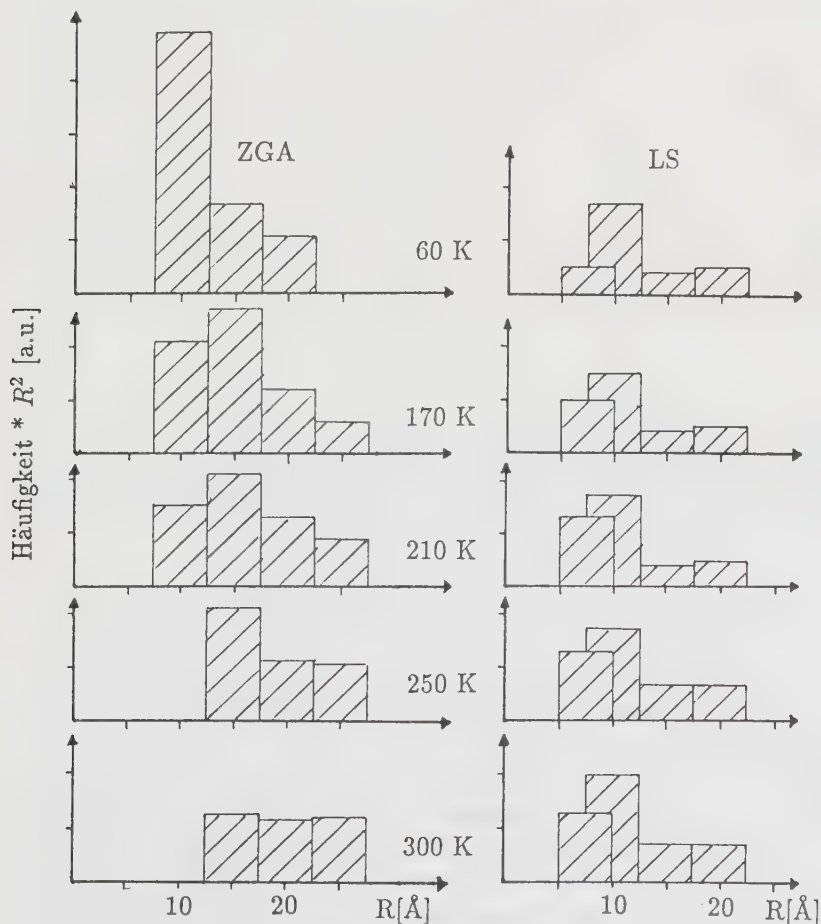


Abb.V.10 Größenverteilung der ZGA- und LS-Loops in Cu nach verschiedenen Erholungstemperaturen.

Größenverteilung der Leerstellenloops bleibt dagegen bis 300 K stabil. In Abbildung V.11 ist die Entwicklung der mittleren ZGA- und LS-Loopradien mit zunehmender Erholungstemperatur aufgezeichnet. Bei 300 K beträgt der mittlere Radius der ZGA-Loops 18 Å und der der LS-Loops etwa 10 Å.

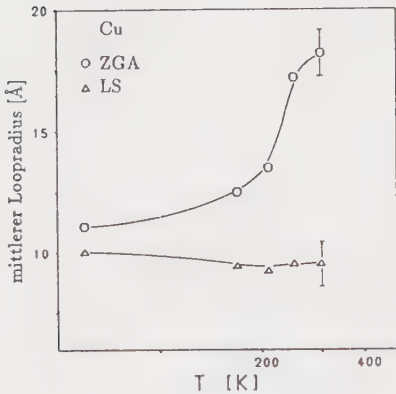


Abb.V.11 Mittlerer Radius der ZGA-Loops (o) und der LS-Loops (Δ) bei thermischer Erholung.

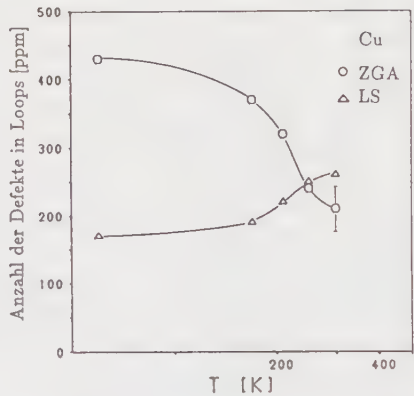
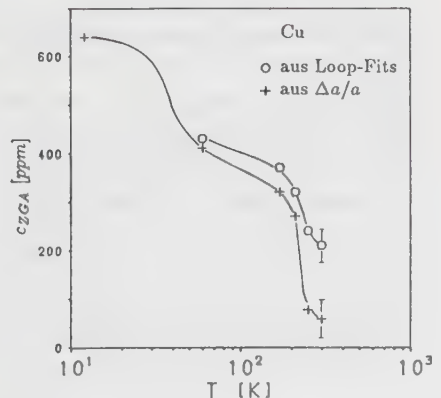


Abb.V.12 Anzahl der ZGA (o) und LS (Δ) in Loops bei thermischer Erholung.

Die Zahl der insgesamt in Loops vorhandenen Zwischengitteratome und Leerstellen ist in Abbildung V.12 dargestellt. Es ist zu erkennen, daß die Anzahl der Zwischengitteratome in Loops mit der Ausheiltemperatur abnimmt. Da nicht zu erwarten ist, daß sich einmal gebildete Loops wieder auflösen (Schilling 1978), muß dies auf die Rekombination mit Leerstellen zurückgeführt werden. Besonders stark ist die Abnahme ab 170 K in Stufe III. Gleichzeitig wächst die Anzahl der Leerstellen in Loops. Dies kann damit erklärt werden, daß Leerstellen oder kleine LS-Agglomerate beweglich werden. Sie können entweder durch Agglomeration neue LS-Loops bilden oder zu LS-Loops wandern und diese vergrößern oder an ZGA-Loops ausheilen.

Aus der asymptotischen Streuung läßt sich also die Defektkonzentration bestimmen, wenn die Streuerverteilung von Loops dominiert wird. Wird dagegen die Defektkonzentration aus der Änderung des elektrischen Restwiderstandes oder des Gitterparameters mit dem ϱ_F und dem ΔV_F der Einzeldefekte bestimmt, so können sich beträchtliche Fehler ergeben, da sich bei der Bildung von großen Agglomeraten ϱ_F und ΔV_F ändern können. Besonders drastisch zeigt sich das, wenn alle Defekte in Loops gebunden vorliegen. Für Einzeldefekte ist das Relaxationsvolumen des Frenkeldefekts $\Delta V_F = \Delta V_{ZGA} + \Delta V_{LS} = (1.55 - 0.25)V_a = 1.3 V_a$. Liegen die Defekte jedoch in Loops, so ist $\Delta V_{ZGA} = V_a$ und $\Delta V_{LS} = -V_a$ und damit $\Delta V_F = 0$. Die Gitterparameteränderung ist nach Gleichung II.8 gegeben durch $\Delta a/a = c/3 \Delta V_F$. Die Bildung von Versetzungsringen führt also zu einer zusätzlichen Erholung des Gitterparameters, die die Abnahme durch die Defektkonzentration noch verstärkt. Dieser Effekt wird in Abbildung V.13 veranschaulicht. Einmal wurde die Defektkonzentration aus der Gitterparameteränderung mit dem Relaxationsvolumen für Einzeldefekte berechnet (+), das andere Mal wurde sie aus ZGA-Loop-Fits gewonnen (o). Es zeigt sich eine deutlich raschere Erholung des Gitterparameters, was auf das gänderte Relaxationsvolumen zurückzuführen ist. Die große Abweichung um einen Faktor 3-4 bei 250 und 300 K zeigt, daß dort der größte Teil der Defekte als Loops vorliegt.

Abb.V.13 Erholung der ZGA-Konzentration.
(o berechnet aus ZGA-Loop-Fits).
(+ berechnet aus $\Delta a/a$ mit $\Delta V_F = 1.3 V_a$).



In Abschnitt V.1 wurde der Agglomerationsgrad der Zwischengitteratome in den Aluminiumlegierungen aus der Erholung der Huangintensität im Vergleich zur Streuung von zufällig verteilten Einzeldefekten ermittelt. Die Defektkonzentration wurde dabei aus der Änderung des elektrischen Restwiderstandes bzw. des Gitterparameters unter der Voraussetzung bestimmt, daß der Beitrag der Defekte zu diesen Größen durch die Agglomeration nicht geändert wird. In Kupfer wurde gezeigt, daß bei der Bildung von Versetzungsringen diese Voraussetzung nicht mehr gültig ist. Im folgenden soll durch Untersuchung der asymptotischen Streuung geklärt werden, ob und in welchem Ausmaß sich in reinem Aluminium Loops bilden und wie sie gegebenenfalls das Erholungsverhalten beeinflussen.

In Abbildung V.14 ist das Erholungsverhalten der diffusen Streuung, multipliziert mit q^4 , zu sehen. Bei niedrigen Erholungstemperaturen ist bei kleineren q -Werten noch das parabelförmige Huangverhalten zu beobachten. Die Agglomeration der Zwischengitteratome nach 60 K zeigt sich in einer Erhöhung der Huangstreuung vor allem bei positiven q -Werten und in einem früheren Übergang zum $1/q^4$ -Verhalten der asymptotischen Streuung. Auch bei höheren Temperaturen bildet sich, im Gegensatz zu Kupfer, kein ausgeprägtes Maximum aus, das auf die Bildung von größeren Loops schließen ließe. Mit Beginn der Leerstellenwanderung bei ca. 200 K verschwindet die diffuse Streuung sehr rasch und nach 280 K ist die vollständige thermische Erholung erreicht. Dies bedeutet, daß die Erholung des Gitterparameters und des elektrischen Restwiderstands in Al und den Al-Legierungen, vor allem auch in Stufe III, richtig als die Rekombination von Defekten interpretiert wurde, und nicht durch ein geändertes Relaxationsvolumen durch die Bildung von Loops verursacht wird.

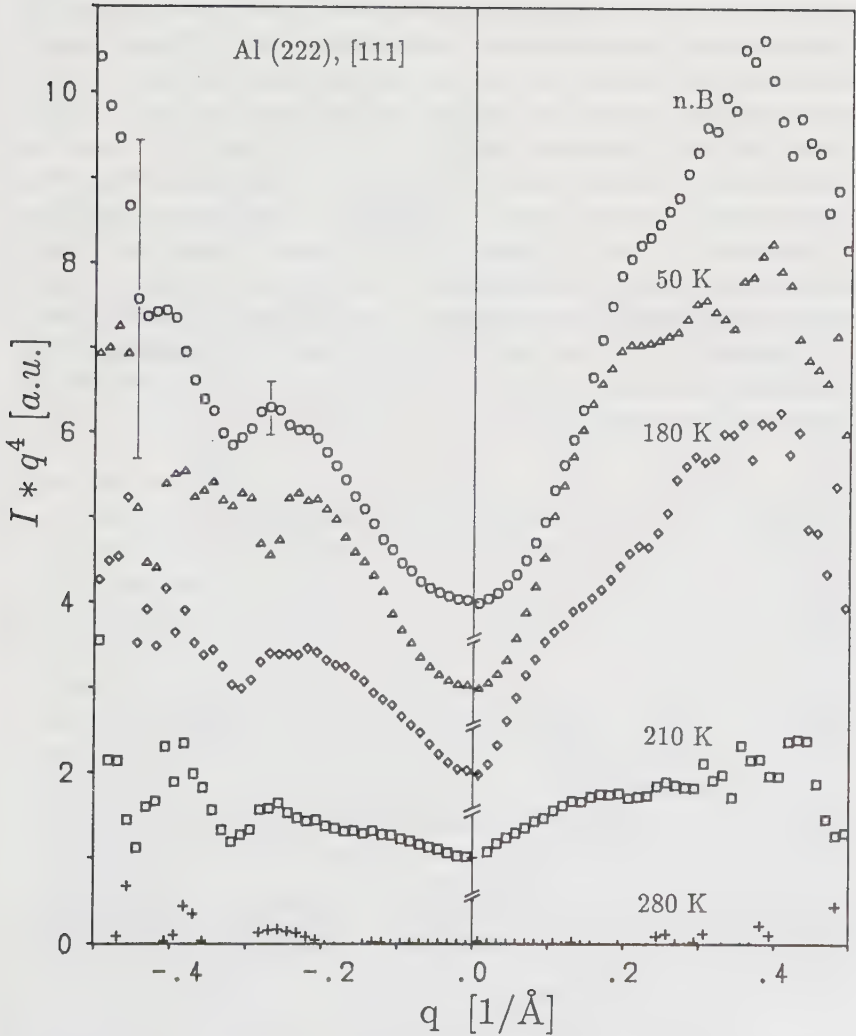


Abb.V.14 Diffuse Streuung am (222)-Reflex von Al multipliziert mit q^4 , nach Bestrahlung und verschiedenen Erholungs-temperaturen. (Iq^4 jeweils um 1 gegeneinander verschoben).

Aus Abbildung V.14 läßt sich eine obere Grenze für die Größe der Loops abschätzen, die sich gebildet haben könnten. Da die Netzebenen in der Umgebung der Versetzungsringe in Aluminium stärker kontrahiert sind als in Kupfer, ist das Maximum für den gleichen Loopradius bei größeren q -Werten in Aluminium zu erwarten (s. S. 19). Mit $q_{\max} = Kb/3.4R$ ergibt sich für einen Loop mit $10 \text{ \AA}$ Radius und $\underline{h} = a/3[111]$ für die Lage des Maximums ein Wert von $0.37 \text{ \AA}^{-1}$. Wäre der mittlere Loopradius größer als $10 \text{ \AA}$, so müßte ein Maximum bei kleineren q -Werten zu beobachten sein. Es können deshalb bestenfalls sehr kleine Versetzungsringe vorhanden sein ($R_L < 10 \text{ \AA}$). Dieses Ergebnis stimmt mit elektronenmikroskopischen Untersuchungen überein, mit denen in Aluminium nach Tieftemperaturbestrahlung mit schnellen Neutronen keine Versetzungsringe aufgelöst werden konnten (Shimomura 1985).

V.2.2. EINFLUSS DER PRIMÄREN KASKADENSTRUKTUR

In Abschnitt IV.2 wurde der Streubeitrag der Leerstellen in Kupfer direkt nach Bestrahlung vernachlässigt. Dies ist auch gerechtfertigt, so lange die meisten Leerstellen einzeln oder in kleinen Agglomeraten vorliegen, da ihr Relaxationsvolumen 6 mal kleiner als das des Einzel-ZGA ist. Der Kern des Streuverhaltens für negative q -Werte nach Bestrahlung und während thermischer Erholung scheint jedoch von stabilen Leerstellengebieten verursacht zu werden, die bereits während der Bestrahlung gebildet wurden (s. Abb.V.8). Wenn man annimmt, daß sich bis zur thermischen Erholung bei 60 K an der Struktur der LS-Zone nichts ändert, so ergibt sich aus der Anzahl der Leerstellen, die bei 60 K in Loops vorliegen, daß bereits nach Bestrahlung bei 4.6 K bis zu 30% der Leerstellen in Form von Loops oder ähnlich streuender, dichter Leerstellengebiete vorhanden sind. Dies wird von neueren, elektronenmikroskopischen Untersuchungen nach Tieftemperaturionenbestrahlung bestätigt (Kirk 1986). Auch molekulardynamische Rechnungen ergeben, daß die LS-Zonen in Cu zu Versetzungsringen (Protasov 1982) oder Stapelfehlertetraeder (Matthai 1985) kollabieren können. Die leerstellenreichen Zonen bleiben sowohl während der ZGA- als auch der LS-Wanderung erhalten. Man kann daraus schließen, daß die ZGA-Wolke nach Bestrahlung deutlich von den LS-Bereichen getrennt ist. In Stufe I, wenn Zwischengitteratome beweglich werden, verstärken sie, wegen der kürzeren Diffusionswege untereinander, eher die eigene Agglomeration als in die dichte LS-Zone zu wandern und dort zu rekombinieren. Ein Teil der Gitterparametererholung bis 60 K wird daher vom geänderten Relaxationsvolumen der Zwischengitteratome durch die Bildung von Versetzungsringen verursacht. Die Rekombination bis zu dieser Temperatur muß damit kleiner als 30% sein.

Dieses Bild, daß die Zwischengitteratomwolke die Leerstellenzone abschirmt, wird auch durch neuere Computersimulationen

von Heinisch (1983) gestärkt. Nach dem Abschluß der ursprünglichen Defekterzeugung wurde zugelassen, daß die Zwischengitteratome in bestimmten Gebieten wandern können. Es zeigte sich, daß die meisten Zwischengitteratome agglomerieren und nur etwa 10% mit Leerstellen rekombinieren.

Dieses Kaskadenbild voneinander getrennter, dichter Leerstellen- und Zwischengitteratomgebiete prägt somit das Verhalten bei thermischer Erholung in Kupfer. Die starke Anisotropie des Kupfergitters erhöht die elastische Wechselwirkung und verstärkt das Agglomerationsverhalten. Beide Effekte führen dazu, daß selbst bei 300 K, weit oberhalb der Temperatur, wo Einzelzwischengitteratome und Leerstellen beweglich sind, ein Drittel der ursprünglichen Defekte in Form von Versetzungsringen überleben kann.

Das Erholungsverhalten in Aluminium ist, im Gegensatz zu Kupfer, mehr durch Rekombination anstatt durch Agglomeration der Defekte gekennzeichnet. Dies wird sowohl von der viel lockereren Kaskadenstruktur als auch von der schwächeren Wechselwirkung der Defekte im nahezu isotropen Aluminiumgitter bestimmt.

In Abschnitt IV.1.3 wurde gezeigt, daß die Zwischengitteratombereiche der Kaskaden in Aluminium sehr weit ausgedehnt und stark verdünnt sind. Über die Verteilung der Leerstellen direkt nach Bestrahlung konnten keine Aussagen gemacht werden, da sie nur sehr schwach verzerren und ihr Streubeitrag deshalb sehr gering ist. Mit Sicherheit ist die Leerstellenverteilung dichter als die der Zwischengitteratome. Aus dem Erholungsverhalten in Stufe III können wir jedoch schließen, daß die Leerstellen, anders als in Kupfer, frei wandern können und rekombinieren. Es müssen also auch die Leerstellenbereiche in Aluminium sehr viel weiter ausgedehnt sein als in Kupfer, und größere Leerstellenagglomerate können nicht vorliegen.

VI. SCHLUSSBEMERKUNG

In den vorhergehenden Abschnitten wurde ausgeführt, daß sich aus der diffusen Röntgenstreuung wertvolle Informationen über Defekteigenschaften und die räumliche Verteilung der Defekte gewinnen lassen, die mit anderen Methoden nicht, oder nur sehr schwer zugänglich sind. Man darf dabei allerdings nicht vergessen, daß es sich um eine integrale Meßmethode handelt, die über alle vorhandenen Defekte mittelt. Ohne zusätzliche Annahmen läßt sich nur dann die volle Information gewinnen, wenn nur eine Defektsorte mit einer Orientierung vorhanden ist. Nach Bestrahlung liegen jedoch im einfachsten Fall (nach Elektronenbestrahlung) zwei Defektsorten, nämlich Einzel-ZGA und Einzel-LS vor. Nach Neutronenbestrahlung und bei thermischer Erholung kommen noch Defektkorrelationen und Defekt-agglomerate hinzu. Gezielte Aussagen, ohne zusätzliche Annahmen, können in diesem Fall nur gemacht werden, wenn die Streubeiträge der einzelnen Defektsorten bei verschiedenen q -Werten unterschiedlich sind und voneinander getrennt werden können. So kann z.B. die Streuung der Einzel-LS im Huangbereich vernachlässigt werden oder es können die Streubeiträge von LS- und ZGA-Loops separiert werden, da sie bei negativen und positiven q -Werten stark unterschiedlich sind. Genaue Aussagen über die Kaskadenkorrelation der Defekte lassen sich nur dann gewinnen, wenn die konkrete Energieverteilung der primär angestoßenen Atome berücksichtigt wird.

Entgegen den früheren Annahmen, überlappen sich die Kaskaden in Aluminium bereits bei der niedrigsten Bestrahlungsdosis von $0.6 \cdot 10^{18}$ n/cm². Um diese zusätzliche Komplikation zu vermeiden, müßte die Bestrahlungsdosis noch beträchtlich

gesenkt werden. Die Schwierigkeiten durch den verringerten Meßeffect könnten durch die Verwendung von Synchrotronstrahlung überwunden werden. Wegen der geringen Divergenz dieser Strahlung könnte damit an guten Einkristallen auch die Korrelationsfunktion sehr nahe am Braggreflex mit noch wesentlich höherer Auflösung gemessen werden.

LITERATURVERZEICHNIS

- AGRANOVICH V.M. and KIRSANOV V.V. in: Physics of Radiation Effects in Crystals, ed. R.A. Johnson and A.N. Orlov, North-Holland (1986)
- AVERBACK R.S., BENEDEK R., MERKLE K.L., J. Nucl. Mat. 75, 162 (1978)
- AVERBACK R.S., BENEDEK R., MERKLE K.L., SPRINKLE J., THOMSON L.J., J. Nucl. Mat. 113, 211 (1983)
- AVERBACK R.S., BENEDEK R. and MERKLE K.L., Phys. Rev. B 18, 4156 (1978)
- AVERBACK R.S., SEIDMAN D.N., Mat. Science Forum 15-18, 963 (1986)
- AVERBACK R.S., MERKLE K.L., Phys. Rev. B 16, 3860 (1977)
- BEAVAN L.A., SCANLAN R.M. and SEIDMAN D.N., Acta Met. 19, 1339 (1971)
- BEEELER J.R. Jr., Phys. Rev. 150, 470 (1966)
- BENEDEK R., J. Appl. Phys. 52, 5557 (1981)
- BÖNING K., FRM-Bericht Nr. 92 (1967)
- BÖNING K., MAUERER W., PFÄNDER K., ROSNER P., Rad. Eff. 29, 177 (1976)
- BOLZE T., Dissertation Universität München (1985)
- BOLZE T., Z. Phys. B 62, 9 (1985)
- BOND W.L., Acta Cryst. 13, 814 (1960)
- BRINKMAN J.A., J. Appl. Phys. 22, 961 (1954)
- DEDERICHS P.H., J. Phys. F 3, 471 (1973)
- DIERCKX R., J. Nucl. Mat. 144, 214 (1987)
- DIMITROV O., DIMITROV C., ROSNER P., BÖNING K., Rad. Eff. 30, 135 (1976)
- DOLL R., MEISSNER H., RIEHL N., SCHILLING W., SCHMEISSNER F., Z. f. angew. Phys. 17, 321 (1964)

- DOSCH H., Diplomarbeit Universität München (1980)
- DÜSING G., SASSIN W., SCHILLING W., HEMMERICH H., Cryst. Latt. Def. 1, 55 (1969)
- DÜSING G., HEMMERICH H., SASSIN W., SCHILLING W., Cryst. Latt. Def. 1, 135 (1968)
- DWORSCHAK F., MONSAU T.H. and WOLLENBERGER H., J. Phys. F 6, 2207 (1976)
- DWORSCHAK F., DIMITROV C., DIMITROV O., J. Phys. F 8, L153 (1978)
- EHRHART P., J. Nucl. Mat. 69 & 70, 200 (1978)
- EHRHART P., TRINKAUS H., LARSON B.C., Phys. Rev. B 25, 834 (1982)
- EHRHART P., SCHÖNFELD B., SONNENBERG K. in: Proc. of Yamada Conference V, Point Defects and Defect Interactions in Metals, ed. J. Takamura, M. Doyama, M. Kiritani, University of Tokyo Press (1982)
- EHRHART P., Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 41, 13 (1985)
- EHRHART P., SCHILLING W., Phys. Rev. B 8, 2604 (1973)
- EHRHART P., SCHLAGHECK U., J. Phys. F 4, 1575 (1974)
- EISENRIEGLER E., Cryst. Latt. Def. 2, 181 (1971)
- EYRE B.L., J. Phys. F 3, 422 (1973)
- FICKETT F.R., Cryogenics 11, 349 (1971)
- GIBSON J.B., GOLAND A.N., MILGRAM M. and VINEYARD G.H., Phys. Rev. 120, 1229 (1960)
- GILAT G., NICKLOW R.M., Phys. Rev. 143, 487 (1966)
- GOLDSTONE J.A., PARKIN D.M. and SIMPSON H.M., J. Appl. Phys. 53, 4189 (1982)
- GRANATO A.V., HOLDER J., HULTMAN K.L., JOHNSON D.L., STETESER G.G., WALLACE P., WONG H., Proc. of Yamada Conference V Point Defects and Defect Interactions in Metals, ed. J. Takamura, M. Doyama, M. Kiritani, University of Tokyo Press (1982)
- GRASSE D., Dissertation Universität München (1980)
- GRASSE D., B. v. GUERARD and J. PEISL, Rad. Eff. 66, 21 (1982)

- v. GUERARD B., GRASSE D., PEISL J., Phys. Rev. Let. 4, 262 (1980)
- v. GUERARD B., Dissertation TU München (1974)
- GUINAN M.W. and KINNEY J.H., J. Nucl. Mat. 103&104, 1319 (1981)
- HEINISCH H.L., J. Nucl. Mat. 108 & 109, 62 (1982)
- HEINISCH H.L., J. Nucl. Mat. 117, 46 (1983)
- HAUBOLD H.-G., Dissertation T.H. Aachen, Berichte der KFA Jülich, Jül-1090-FF (1974)
- HUANG K., Proc. Roy. Soc. A 190, 102 (1947)
- INGLE K.W., PERRIN R.C., SCHOBER H.R., J. Phys. F 53, 4189 (1982)
- INTERNATIONAL TABLES for X-Ray Crystallography, Vol. III, The Kynoch Press, Birmingham, England (1968)
- JAOUEN C., RIVIERE J.P., TEMPLER C. and Delafond J., J. Nucl. Mat. 131, 11 (1985)
- JOHANN H.H., Z. Phys. 69, 185 (1931)
- JOHANNSON T., Z. Phys. 85, 507 (1933)
- JUNG P., Phys. Rev. B 23, 664 (1981)
- JUNG P., J. Nucl. Mat. 117, 70 (1983)
- KANZAKI H., J. Phys. Chem. Sol. 2, 107 (1957)
- KINCHIN G.H. and PEASE R.S., Rept. Prog. Phys. 18, 1 (1955)
- KING W.E., BENEDEK R., J. Nucl. Mat. 117, 26 (1983)
- KIRITANI M., Mat. Science Forum 15-18, 1023 (1986)
- KIRK M.A., ROBERTSON I.M., VETRANO J.S., JENKINS M.L. and FUNK L.L. in: 13th Int. Symp. on Effekts of Irradiation on Materials, Seattle (1986)
- KÖHLER W. und SCHILLING W., Nucleonic 7, 389 (1965)
- KRIVOGLAZ M.A., Theory of X-Ray and Thermal Neutron Scattering by Real Crystals, Plenum, New York (1969)
- LARSON B.C. and YOUNG F.W., JR in: Proc. of Yamada Conf. V, Point Defects and Defect Interactions in Metals, ed. J. Takamura, M. Doyama, M. Kiritani, University of Tokyo Press (1982)

- LEIBFRIED G., BREUER N., Point Defects in Metals I,
Springer Tracts in Modern Physics 81, Springer Verlag,
Berlin (1978)
- LEIBFRIED G. in: Vacancies and Interstitials in Metals,
North-Holland, Amsterdam (1969)
- LINDHARD J., NIELSON V., SCHARFF M., THOMSEN P.V.,
K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 33 (1963)
- LÜCK G. and SIZMANN R., phys. stat. sol. 5, 683 (1964)
- MANSEL W., MÜLLER P., WAHL D., WALLNER G., WECK W., Arbeits-
treffen des Verbundes: "Komplementäre Methoden und
Defekte", Marburg (1982)
- MANSEL W. and VOGEL G., J. Phys. F 7, 253 (1977)
- MARTINSEN D., Dissertation T.H. Aachen, Berichte der KFA
Jülich, Jül-1508 (1978)
- MATTHAI C.C. and BACON D.J., J. Nucl. Mat. 135, 173 (1985)
- MOHR W., Dissertation TU München (1979)
- NAKAGAWA M., BÖNING K., ROSNER P., VOGL G., Phys. Rev. B 16,
5285 (1977)
- NEELY H.H., BAUER W., Phys. Rev. 149, 535 (1966)
- NICKLOW R.M., GILAT G., SMITH H.G., RAUBENHEIMER L.J.,
WILKINSON M.K., Phys. Rev. 164, 922 (1967)
- OHR S.M., phys. stat. sol. (b) 64, 31 (1974)
- PARKIN D.M. and GOLAND A.M., Rad. Eff. 28, 31 (1976)
- PEISL H., SPALT H., WAIDELICH W., phys. stat. sol. 23, K75
(1967)
- PEISL H., Appl. Cryst. 8, 143 (1975)
- POROD G. in: Small Angle X-Ray Scattering, ed. O. Glatter and
O. Kratky, Academic Press (1982)
- PRACASH S. and LUCASSON P., Cryst. Latt. Def. 8, 111 (1979)
- PROTASOV V.I. and CHUDINOV V.G., Rad. Eff. 66, 1 (1982)
- RAUCH R., Diplomarbeit Universität München (1982)
- ROBINSON M.T. and TORRENS I.M., Phys. Rev. B 9, 5008 (1974)
- ROBINSON M.T. in: Nuclear Fusion Reactors, ed. J.L. Hall and
J.H.L. MAPLE, British Nuclear Energie Society, London
(1970)

- ROBERTO J.B., SCHOENFELD B. and EHRHART P., Phys. Rev. B 18, 2591 (1978)
- ROSNER R., Dissertation TU München (1979)
- SCHIFFGENS J.O., SCHWARTZ D.W., ARIYASU R.G. and CASCADDEN S.E., Rad. Eff. 39, 221 (1978)
- SCHILLING W., BURGER G., ISEBEK K., WENZEL H. in: Vacancies and Interstitials in Metals, North-Holland, Amsterdam (1969)
- SCHILLING W., J. Nucl. Mat. 69 & 70, 465 (1978)
- SEEGER A., Rad. Dam. in Solids, Vol 1, 107, IAEA (1962)
- SEITZ F. and KOEHLER J.S., Solid State Physics 2, ed. Seitz F. and Turnbull D., Academic Press, N.Y. (1956)
- SHIMOMURA Y., GUINAN M.W., KIRITANI M., J. Nucl. Mat. 133&134, 415 (1985)
- SIEBER G., WEHR G., BÖNING K., J. Phys. F 7, 2503 (1977)
- SPARKS C.J. and BORIE B. in: Local Atomic Arrangements Studied by X-Ray Diffraction, Metallurgical Society Conferences 36, 5, Gordon and Breach (1966)
- STOKES A.R., WILSON A.J.C., Proc. Phys. Soc. 56, 174 (1944)
- SWANSON M.L., HOWE L.M., QUENNEVILLE A.F., Phys. Stat. Sol. a 31, 675 (1975)
- SWANSON M.L., HOWE L.M. and QUENNEVILLE A.F., J. Nucl. Mat. 69, 372 (1979)
- THEIS U. and WOLLENBERGER H., J. Nucl. Mat. 88, 121 (1980)
- TRINKAUS H., phys. stat. sol. (b) 51, 307 (1972)
- TRINKAUS H., Z. f. angew. Phys. 31, 229 (1971)
- TRINKAUS H., phys. stat. sol. (b) 64, 209 (1972)
- TRINKAUS H. in: Fundamental Aspects of Radiation Damage in Metals, Vol. I, 254 (1975), ERDA CONF-751006, ed. M.T. Robinson and F.W. Young, Jr
- WALLNER G., ANAND M.S., GREENWOOD L.R., KIRK M.A., MANSEL W., WASCHKOWSKI W., eingereicht bei J. Nucl. Mat.
- WEBER W., Peisl J., Phys. Rev. B 28, 806 (1983)
- WEI C.-Y., CURRENT M.I. and SEIDMAN D.N., Phil. Mag. A 44, 459 (1981)
- WILSON W.D., HAGGMARK L.G., BIRSACK J.P., Phys. Rev. B 15, 2458 (1977)

Herrn Prof. Dr. J. Peisl danke ich für das Thema sowie für die Möglichkeit zu selbständigem Arbeiten und für sein Interesse und seinen Einsatz auch auf Gebieten, die nicht zu seinen unmittelbaren Lehrstuhlaufgaben gehören.

Herrn Dr. G. Wallner danke ich recht herzlich für die Unterstützung bei den Experimenten und für viele sachliche Diskussionen und Anregungen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Besonders herzlich danke ich Herrn Dipl. Phys. A. Schmalzbauer für die freundschaftliche Zusammenarbeit und seine große Hilfsbereitschaft und für viele, nicht nur physikalische Diskussionen.

Weiter danke ich:

der TTB-Gruppe unter Leitung von Herrn Dr. J. Marangos für ihre Unterstützung bei den Neutronenbestrahlungen.

den Arbeitskollegen aus den Nachbarlabors der TU-München, insbesondere Herrn Dipl. Phys. A. Fleischmann, für ihre freundliche Hilfsbereitschaft.

Herrn Dr. R. Poerschke und Herrn W. Tietze vom Hahn-Meitner-Institut in Berlin und Herrn Dr. T. Bolze für ihre Hilfe bei den Elektronenbestrahlungen.

Herrn Dr. A. Stärk, Herrn Müller und Frau R. Stadler vom Institut für Radiochemie der TU-München für die Durchführung der Aktivierungsanalysen.

Herrn H. Utz, H. Schneider und G. Neff vom Kristallabor der TU-München für ihre Unterstützung bei der Probenpräparation.

den Mitarbeitern der Werkstatt der Sektion Physik für die zuverlässige Fertigung von mechanischen Bauteilen und allen anderen, die zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.

Diese Arbeit wurde vom BMFT gefördert.

Rudolf Rauch
Rheinstr. 10
8000 München 40

Lebenslauf

Name: Rudolf Rauch
Geburtsdatum: 20.09.1955
Geburtsort: Regensburg
Staatsangehörigkeit: deutsch
Familienstand: ledig

1962 - 1966 Volksschule Teublitz
1966 - 1975 Gymnasium Schwandorf (Abitur)
1975 - 1976 Grundwehrdienst
1976 - 1977 Chemiestudium an der Universität München
1977 - 1982 Studium der Physik an der Universität München
(Diplom)
1983 - 1987 wissenschaftlicher Angestellter am Lehrstuhl
Prof. Dr. J. Peisl

